

博士学位論文

磁気テープストレージシステムの
大容量化に関する研究

平成24年3月

茨城大学大学院理工学研究科

清水 治

要旨

世界がコンピュータネットワークで繋がり、一般の人々も多様な情報発信が可能になった。また、科学技術の進歩は観測や計測の高度化を促し、日々生成される世界の情報量は急速に増加している。このような中、情報ストレージシステムも大容量化が求められており、大規模な情報ストレージシステムとして、総所有コストが最も安価な磁気テープシステムの更なる高容量化推進は社会的要請の強い課題である。本研究は、磁気テープシステムの高容量化・高密度化を推進するための研究であり、①高保磁力な媒体への記録を可能にする記録ヘッド用高飽和磁束密度軟磁性材料を開発すること、及び②高記録密度で安価な塗布型磁気テープを開発することを目的としたものである。以下具体的概要を示す。

第2章では、高飽和磁束密度耐熱性軟磁性材料の開発を取り上げた。最も飽和磁束密度が高い金属である Fe を主成分して、Fe の持つ軟磁性阻害要因(保磁力の起源)である結晶磁気異方性の影響を排除する方法について2つのアプローチで検討した。ここでは、磁気ヘッドの製造プロセスの自由度を確保するため、耐熱性も重要な要件とした。

最初の方法は、薄膜の配向制御による保磁力低減の検討である。bcc 構造を持つ α -Fe の結晶対称性から、結晶の配向方位によって磁化の面内回転に伴うエネルギーの増減(保磁力として現れる)が異なることが予想された。そこで、(100)、(110)、(111)配向それぞれについて、形状(膜厚)の効果、磁気異方性定数の効果を定量的に計算した。その結果、(111)配向膜であれば、磁歪が十分に低い組成(例えば Si 含有 Fe)を選択することで、保磁力で、1 Oe 以下の優れた軟磁性薄膜が得られる可能性があることを示した。

次の方法は、微結晶薄膜によって結晶磁気異方性の影響を低減する方法である。非晶質状態の薄膜を作製し、熱処理によって微結晶を析出させ、これらの微結晶が、交換結合で相互作用を及ぼしあうことにより、結果として、結晶磁気異方性の影響を排除する方法である。ここでは、窒素を用いる方法と硼素を用いる方法を検討した。窒素を用いた場合は、Fe-Zr-N、Fe-Hf-N、Fe-Ta-N、Fe-Nb-N の三元系薄膜によって、15 kG 程度の高い飽和磁束密度で、高耐熱性軟磁性薄膜を開発した。これらの中で、実用的観点から Fe-Zr-N について詳細にその性質を調べ、薄膜磁気ヘッド用材料として有望であることを確認した。硼素を用いた場合は、Fe-Zr-B に微量の Co、Ni、Cr、V 等の第四の元素を添加することによって磁歪が調整され、優れた軟磁性が出現することを示した。特に Fe-Co-Zr-B からなる四元系薄膜で、18 kG の飽和磁束密度、1 Oe 程度の低い保磁力、5000 以上の高い透磁率を有する高耐熱性軟磁性薄膜を開発した。

この章では、新規軟磁性薄膜開発において重要となる磁歪測定方法についても取り上げ、

ヤング率やポアソン比などが未知の軟磁性薄膜の磁歪定量方法についても論じた。

第3章では、高記録密度塗布型媒体の開発を取り上げた。ここでは、記録密度を飛躍的に高めることが可能な磁気テープシステム用媒体の開発を目的としたが、実用的観点から単位情報量あたりのコストも重要である。従って、スパッタ媒体や蒸着媒体のような真空プロセスを必要とするものではなく、大気中での塗布プロセスで製造可能な、高記録密度薄層塗布型媒体を開発することを目的とした。

まず、現在の主流であるメタル媒体について、その薄層化の効果について、シミュレーション結果に基づいて議論した。ここでは、薄層化に伴い、記録層内部での反磁界が低下するため、再生出力は保磁力よりも記録層の磁束密度に大きく依存すること、また、保磁力が 2500 Oe 以上の媒体に記録するためには、記録ヘッドの磁極材料として少なくとも 15 kG 以上の飽和磁束密度が必要なことを示した。また、膜厚方向の配向分散は角型比を低下させるにも関わらず、その垂直成分の影響で、再生出力を向上させることも明らかにした。

次に、磁性粒子としてバリウムフェライトを用いた媒体によって、高記録密度を達成する方法について検討した。ここでは、粒子のサイズの影響、配向の影響、異方性磁界分布の影響、摺動性の影響などについて、シミュレーション及び実験により詳細に議論し、システムとして高記録密度を達成するために必要な媒体を実現し、飛躍的な高記録密度実現の指針を明確にした。また、実用的観点から、化学的安定性や熱的安定性についても議論した。これらによって、十分な化学的・熱的安定性を備えたバリウムフェライト媒体で垂直配向媒体を開発し、摺動特性に優れた表面形状を実現し、面記録密度 29.5 Gbit/in² を実証した。この記録密度は、最新メタル媒体で実現されている 1.2 Gbit/in² を凌駕する密度であり、今後、メタル媒体に代わりバリウムフェライト媒体が、数世代にわたって磁気テープ媒体の主流になり得ることを示唆するものである。

ABSTRACT

Owing to the growth of the Internet, the world is now connected through the World Wide Web, which enables ordinary people to publish a large variety of information. In addition, measurements and observations in the fields of science and technology have become more accurate and sophisticated with advancements in these fields, resulting in an enormous increase in the amount of data generated worldwide on a daily basis. This trend warrants an acceleration of the capacity enhancement of information storage systems, especially magnetic tape systems, which are cost effective for storing massive amounts of information. This study intends to develop a key technology for achieving a higher capacity of magnetic tape systems. This includes the development of a high saturation flux density material for the recording head, which would make it possible to record on a high coercivity medium, along with the development of a cost-effective high recording density coated magnetic tape medium. Each of these two goals is briefly discussed in the following text.

In Chapter 2, the development of high saturation magnetic density materials was discussed. Two approaches based on the use of Fe, which has the highest saturation flux density among pure elements, were studied for removing the effect of magnetocrystalline anisotropy, which is an obstructive factor to achieving soft magnetic properties. The heat resistance properties of the developed material were also important in order to keep the head manufacturing process flexible.

The first approach is a method of reducing the effect of magnetocrystalline anisotropy by orientation control. α -Fe, which has a bcc structure, may have different magnetic properties for different crystal orientations (100), (110), and (111). A calculation of the coercivity for each orientation was carried out, including the effect of the shape (film thickness) and magnetocrystalline anisotropy. This indicated that (111) oriented films can have excellent soft magnetic properties, with a coercivity of less than 1 Oe when a composition having a sufficiently low magnetostriction is selected, such as Si-containing Fe films.

The second approach is a method of using Fe-based nano-crystalline films. The heat treatment of a sputter-deposited amorphous film can create a nano-crystalline structured film. Fe-based alloys were subjected to intensive experiments with the aim of suppressing the grain size of magnetically coupled α -Fe in order to reduce the effects of the magnetocrystalline anisotropy of Fe on the soft magnetic properties. For this purpose, nitrogen-containing and boron-containing films were investigated. In the nitrogen-containing films, the ternary systems of Fe-Zr-N, Fe-Hf-N, Fe-Ta-N, and Fe-Nb-N exhibited excellent soft magnetic properties, with a high heat resistance of over 550 °C and a high saturation flux density of 15 kG. Fe-Zr-N films were intensively investigated as the target material for a thin film recording head. In the

boron-containing films, adding a small amount of Co, Ni, Cr, or V to the Fe-Zr-B system sufficiently reduced the magnetostriction, resulting in the exhibition of excellent soft magnetic properties. In particular, in the Fe-Co-Zr-B system, a saturation flux density as high as 18 kG was realized, with a permeability of more than 5000, while maintaining a high heat resistance.

In this chapter, the method of measuring the magnetostriction constant of soft magnetic films was also discussed especially for the films whose Young's modulus and Poisson's ratio are unknown.

In Chapter 3, the development of high recording density medium was discussed. The goal of this study was to develop a significantly high recording density medium, while taking into account cost efficiency, which is important from the practical viewpoint. Therefore, instead of using "sputtered media" or "evaporated media," which require a vacuum chamber for the production process, thin layer coated media that could be prepared under ambient conditions were investigated using metal particles and barium ferrite particles.

First, metal particle coated media, which now dominate the market, were investigated in order to determine the effect of reducing the thickness of the magnetic layer with the help of a simulation using a curling model. The results indicated that the output depends on the flux density in the magnetic layer rather than the coercivity, because the demagnetization field decreases with a reduction in the magnetic layer thickness. The results also indicated that a recording head with a saturation flux density of more than 15 kG for the pole material is required in order to record on a medium with a coercivity of more than 2500 Oe. The simulation also revealed that the dispersion of easy axis direction of out-of-plane component make the output increase because of the perpendicular component whereas that decreases the squareness ratio.

Second, methods for achieving a high recording density with barium-ferrite particles were investigated. The effects of the particle size, particle orientation, magnetic anisotropy dispersion, and head slidability on the media were estimated using simulations and/or experiments. A clear guideline for achieving a high recording density was established including a discussion based on an investigation of the thermal stability and chemical stability from a practical viewpoint. Finally, an areal recording density of 29.5 Gbit/in² was demonstrated. This value is significantly higher than the 1.2 Gbit/in² value obtained in the case of metal particle media. This implies that barium-ferrite media will replace metal particle media and enter mainstream magnetic tape media for the next several generations.

目 次

第1章 緒論	1
第1節 本研究の背景	1
§ 1.1.1 増大する世界の情報量と磁気テープの役割	1
§ 1.1.2 磁気記録システムの記録密度	7
§ 1.1.3 磁気テープシステムの変遷	10
§ 1.1.4 磁気ヘッド用磁極材料	15
第2節 本研究の目的	16
第2章 高飽和磁束密度耐熱性軟磁性材料	18
第1節 緒言	18
第2節 背景	19
§ 2.2.1 はじめに	19
§ 2.2.2 結晶磁気異方性と保磁力	20
§ 2.2.3 磁歪と保磁力	23
第3節 立方晶磁性材料の配向制御による軟磁気特性	25
§ 2.3.1 はじめに	25
§ 2.3.2 方法	25
§ 2.3.3 結果	30
§ 2.3.4 まとめ	35
第4節 窒素系鉄基微結晶軟磁性薄膜	36
§ 2.4.1 はじめに	36
§ 2.4.2 Fe-(Zr, Hf, Ta, Nb)-N 系材料の軟磁気特性	38
§ 2.4.3 Fe-Zr-N 系薄膜の過剰窒素と軟磁気特性	56
§ 2.4.4 まとめ	68
第5節 硼素系鉄基微結晶軟磁性薄膜	69
§ 2.5.1 はじめに	69
§ 2.5.2 Fe-Zr-B-M(M=Co, Ni, Cr, V)の軟磁気特性	70
§ 2.5.3 まとめ	80
第6節 軟磁性薄膜の磁歪測定方法	81

§ 2.6.1 はじめに	81
§ 2.6.2 測定原理	81
§ 2.6.3 測定方法	82
§ 2.6.4 測定例	88
§ 2.6.5 まとめ	89
第7節 結言	90
第3章 高記録密度薄塗布型磁気媒体	92
第1節 緒言	92
第2節 背景	92
第3節 薄層塗布型メタル媒体の記録再生特性	94
§ 3.3.1 はじめに	94
§ 3.3.2 モデル	94
§ 3.3.3 結果	95
§ 3.3.4 まとめ	105
第4節 薄層塗布型バリウムフェライト媒体	106
§ 3.4.1 はじめに	106
§ 3.4.2 バリウムフェライト粒子の微粒子化の効果	106
§ 3.4.3 容易軸配向と記録再生特性	119
§ 3.4.4 磁性粒子の異方性分散や磁化量分散と記録再生特性	141
§ 3.4.5 バリウムフェライト媒体の熱的安定性	146
§ 3.4.6 バリウムフェライト媒体の化学的安定性	153
§ 3.4.7 微粒子垂直配向媒体の総合性能評価	160
§ 3.4.8 面記録密度性能の見積り	171
§ 3.4.9 まとめ	177
第5節 結言	178
第4章 総括	179
第1節 結果の概要	179
第2節 今後の展望	181
参考文献	182
本研究に関する発表論文リスト	193

謝辞	197
付録	198
A リニアテープシステムのトラック位置検出方法	198
B 各種SNRの定義	200

第1章 緒論

第1節 本研究の背景

§ 1.1.1 増大する世界の情報量と磁気テープの役割

この20年間、インターネットの普及に伴い、社会は、爆発的な情報化を経験してきた。従来は、もっぱら情報の受けてであった一般の人たちも、発信者になり得る時代になった。また、科学技術の進歩は観測や計測の高度化を促し、日々生成される情報量は級数的な増加を続けている。International Data Corporationによれば[A1]、2009年は世界的な不況であったにも関わらず、世界の情報量は年率にして62%もの増加を示し、ついに800 Exa Byte (10^{18} byte)を超えた。また、今後もとどまることなく2020年には35 Zetta Byte (10^{21} byte)に達する見込みとのことである。2009年の800 Exa Byteから、2020年の35 Zetta Byteまで、11年間で実に44倍、年率にして平均で毎年40%以上の増加が見込まれていることになる。このように増え続ける情報の保存媒体としては、安価であること、長期保存に対する信頼性が高いこと、単位体積あたりの保存可能な情報量が大きいこと、等が重要な因子とされる。また、情報を維持保存しておくためのエネルギー消費が少ないことも望まれる条件である。

表 1.1.1-1 に各種ストレージシステムの比較を示す。近年、半導体の高容量化やコスト低下は著しく、特に、多値(Multi Level Cell)NAND型フラッシュメモリーにより、半導体ストレージ(SSD:Solid State Drive)は、急速にそのアプリケーションを増やしている。実際、可搬性を要求される分野で、必要な容量が数十GB程度以下の比較的低容量の分野、例えば携帯音楽プレーヤーや、カメラなどの映像機器、もしくは、iPadやKindleなどに代表される携帯情報端末では半導体が利用されることが多くなっている。しかし、大容量を必要とするサーバーシステムの分野では、依然としてハードディスクと磁気テープが情報ストレージの主役である。ハードディスクはアクセス時間の短さからユーザーがランダムに読み書きを必要とする分野で非常に高い利便性がある。一方、長期保存を必要とする分野や、超大容量を必要とする分野においては磁気テープの低コスト性と信頼性[A2]は、5年程度で一定の故障率を示すHDD[A3]で代替できるものではなく、今後も増大し続ける情報の保存媒体としての磁気テープの役割は大きい。必然的に高密度化への要求も強く、実際LTO Ultriumシリーズで代表されるコンピュータ用

表 1.1.1-1 各種ストレージシステムの特徴比較

	磁気テープ	ハードディスク	光ディスク	Flashメモリー/SSD
システム容量	◎ (TB~数百PB)	○ (TB~数PB)	△ (GB~100TB)	× (GB~数百GB)
アクセス速度	× (~100s)	◎ (~ms)	○ (200ms~20s)	◎ (~μs)
転送速度	○ (~200MB/s)	○ (~100MB/s)	△ (~25MB/s)	◎ (~500MB/s)
特徴	規模が大きくなるとビットコストが有利になる。データセンタなどではTCOが最も安いとの試算がある。ランダムアクセスには適さない。	ドライブ数台程度の小規模の場合最もビットコストが安い。一定の故障率を持つが、RAID構成とすることにより実用的信頼性を確保できる。	主に小規模なデータ保管メディアやディストリビューションメディアとして利用されている。	ビットコストは非常に高いが、小規模なもの、可搬性を要求される分野に適する。

リニア磁気テープシステムは 2000 年に発売された第 1 世代から 2010 年に発売された第 5 世代まで、2~3 年で 2 倍のペースで容量増加を実現してきた。ハードディスクと異なり磁気テープは、これらの容量増加を三次元的に実現させてきている。即ち、線記録密度とトラック密度の向上及び、テープ長さの増大(テープの薄手化)である。近年の 10 万巻以上のカートリッジ管理が可能なライブラリシステムでは、数百 PB を越える容量が実現されており、クラウドコンピューティングの進展に伴い今後一層の高容量化が期待されている。図 1.1.1-1 に磁気テープカートリッジ(LTO Ultrium 5)の例を示す。このカートリッジは最大(非圧縮)1.5 TB の記録が可能である。テープライブラリシステムは、このようなカートリッジを 10 万巻以上管理可能であり、900 PB まで拡張可能なシステムもある。図 1.1.1-2 には、LTO シリーズの記録密度に関するパラメータ(容量、線記録密度、総トラック数、テープ長)の世代ごとの推移を示している。2001 年の発売当初と比べると、テープ長は 1.5 倍近くになっている。また、線記録密度、トラック数は共に 3 倍以上になっており、結果として総容量で 15 倍を達成している。しかし、近年、メタル磁性体を用いた磁気テープシステムで記録密度の上昇トレンドに鈍化の傾向が現れてきた。これまで記録密度上昇を支えてきた大きな技術的要素は記録に用いるメタル磁性粒子の微細化である。ところが、メタル磁性体はその形状効果(形状磁気異方性)によっ

て保磁力を発現しており、保磁力を維持したまま微細化を進めることが困難な状況になってきた。そこで、更なる高密度化を実現する為に、塗布型テープとしては、金属の代わりに、窒化鉄を使った磁気テープ[A4], [A5]やバリウムフェライト磁性粒子を使った磁気テープ[A6]~[A14]が検討されている。これらの素材は、結晶磁気異方性をその保磁力の起源としているため、異方性が形状に大きく依存しないという特徴を有したものである。また、塗布型以外にも、Co-Oを磁性体として利用した蒸着技術を使う方法[A15], [A16]や、CoCrPt-SiO₂のグラニューラ薄膜等によるスパッタ技術を使う方法[A17]~[A23], 等さまざまな提案も行われている。しかし、リニアテープシステムの場合、媒体の面積がハードディスクの1000倍にも及ぶため、実用化のためには生産性と素材のコストが重要な要素となる。その意味において、真空プロセスを必要としない塗布型テープでの高容量化実現は、社会的要請の高い課題であり、デジタル情報の爆発的増加が続く中、低コストで高容量を実現する媒体として、塗布型テープに対する期待は益々強くなっている。このような中、2011年バリウムフェライトを用いた塗布型媒体が実用化されている。

図 1.1.1-3 に LTO シリーズを含む各種リニアテープシステムのカートリッジ容量と 3.5 インチハードディスクのドライブ容量の比較を示す。2010 年の LTO5 までのテープカートリッジは全て金属磁性体を用いたものである。ここに見られるように、両者の容量は過去 10 年間、概ね同様なペースで増加してきたが、2006 年~2010 年にかけて、テープカートリッジ容量の増加に、飽和傾向が現れていたことが分かる。しかし、2011 年バリウムフェライトを用いた 5 TB のテープカートリッジが実用化され、飛躍的な容量増加を実現した。

図 1.1.1-4 に金属磁性体とバリウムフェライト磁性体の比較を示す。金属磁性体とは、針状形状の FeCo 合金の表面に酸化防止層として passivation layer を形成したものである。金属微粉末を安定に存在させるためには、一定の厚さの表皮(酸化防止層)は必須なものである。また、金属磁性体の異方性磁界は形状異方性を利用して発現している為、合金コア部の縦横比は維持しなくてはならない。つまり、記録密度向上の為に、表皮にも一定の厚さを残したまま、同一形状で微粒子化を進めていく必要がある。この場合、一定サイズ以下に微粒子化を進めていくと、粒子全体の中での表皮の比率が急激に増加してしまい、記録を担う FeCo 合金のコア部分が無くなってしまうという問題が発生する。現在、長軸長 35 nm 程度の金属磁性体の実用化されているが、さらに微細化を進めることが困難な状況である。

一方、バリウムフェライトは安定な酸化物であり、passivation layer を必要としてい

ない。磁気異方性も結晶磁気異方性を起源としているため、熱力学的安定性が許す限り微細化を進めることが可能である。このように、バリウムフェライトは、メタル磁性体になり、今後の磁気テープの高密度化を担う素材として期待できる素材である。



図 1.1.1-1 磁気テープカートリッジの例

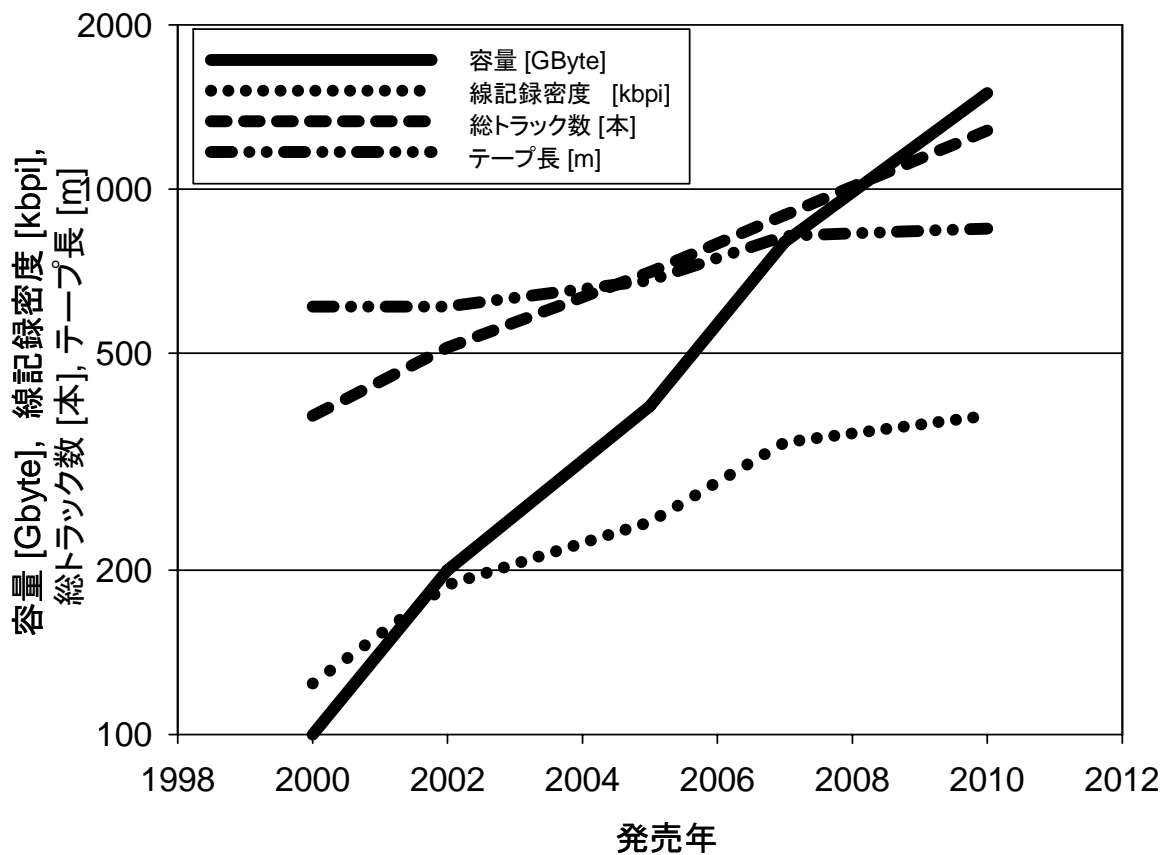


図 1.1.1-2 Ultrium LTO シリーズの記録密度の世代ごとの推移

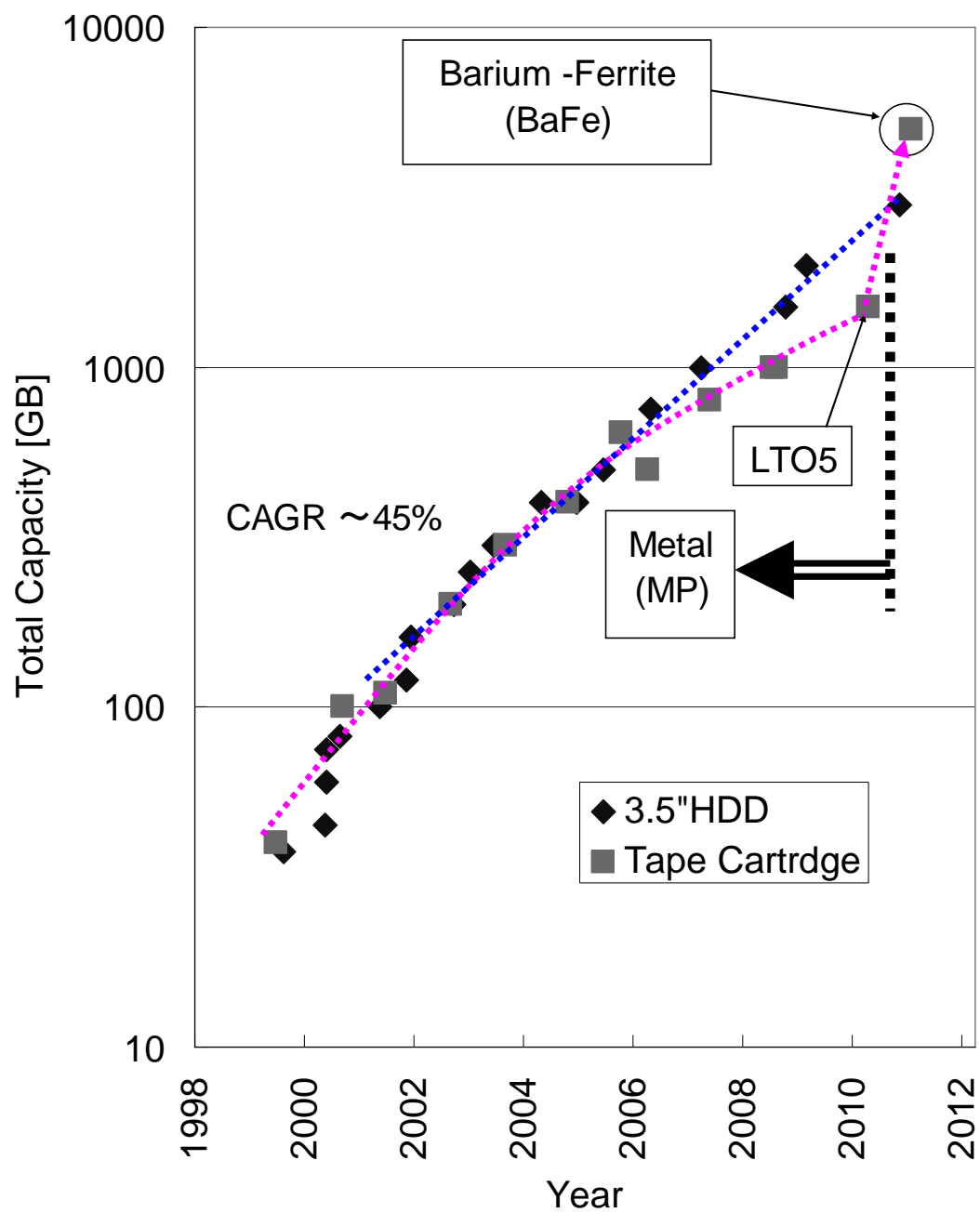
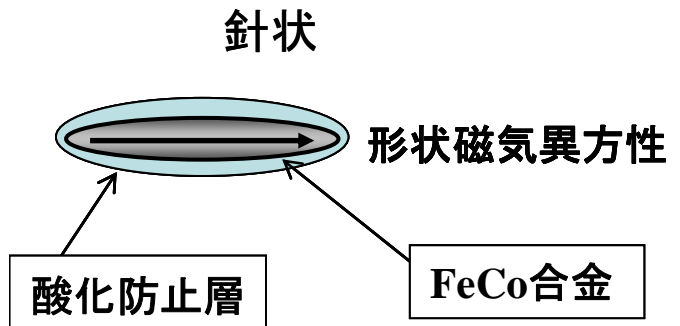
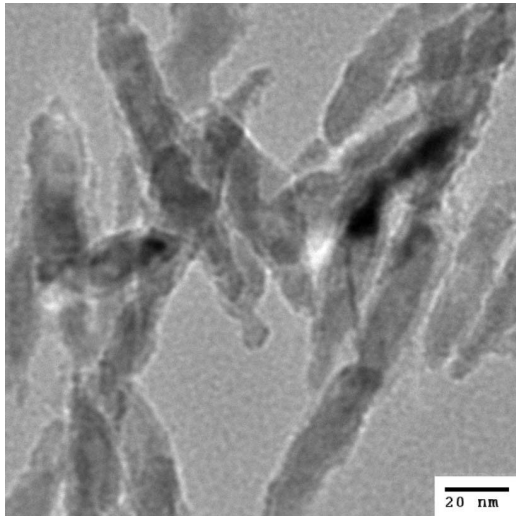


図 1.1.1-3 リニアテープシステムのカートリッジ容量と 3.5 インチハードディスク容量の推移

メタル磁性体(FeCo合金)



バリウムフェライト($\text{BaO}(\text{Fe}_2\text{O}_3)_{12}$)

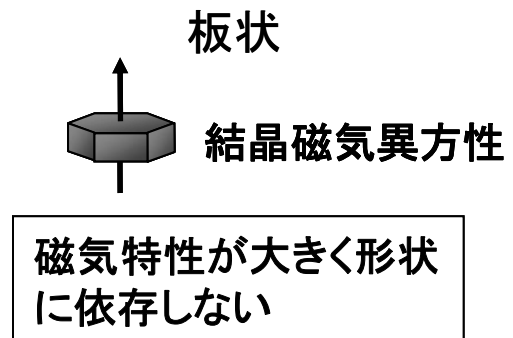
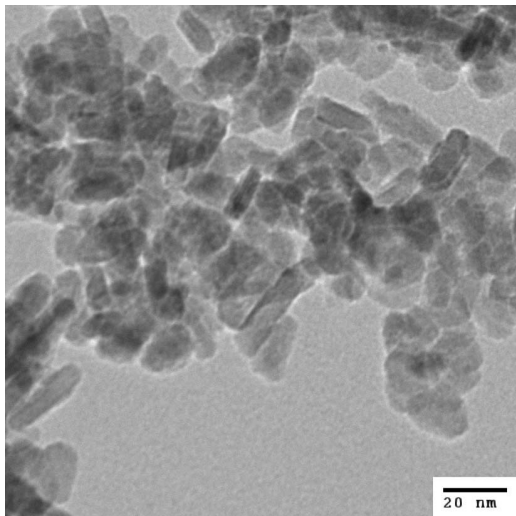


図 1.1.1-4 メタル磁性体とバリウムフェライト磁性体の比較

§ 1.1.2 磁気記録システムの記録密度

磁気記録システムの記録密度を左右する要因は、ヘッド技術、媒体技術、これらの相互作用である HMI(Head Media Interface)技術、記録再生位置に正確にヘッドをポジショニングするサーボ技術など多岐に渡るが、媒体の有する信号雑音比(SNR)は、記録密度を制限する基本的な要件である。この、媒体の SNR は、磁化反転の最小単位体積、即ち、磁性粒子体積の逆数に対応して増大するため、高記録密度(小ビットサイズ)で必要な SNR を得るためには媒体に用いる磁性粒子を微細化する必要がある。

一方、磁化反転に必要なエネルギーは、磁性体の体積(V)と磁気異方性定数(K_u)の積($K_u V$)で決定されるため、磁性粒子を微細化していくと、磁化反転を妨げるエネルギー障壁が低下していくため、熱揺籃により、各粒子の磁化方向が期待しない反転を起こす確率が高くなり、情報消失のリスクが高くなってしまう(図 1.1.2-1 参照)。これを回避し、

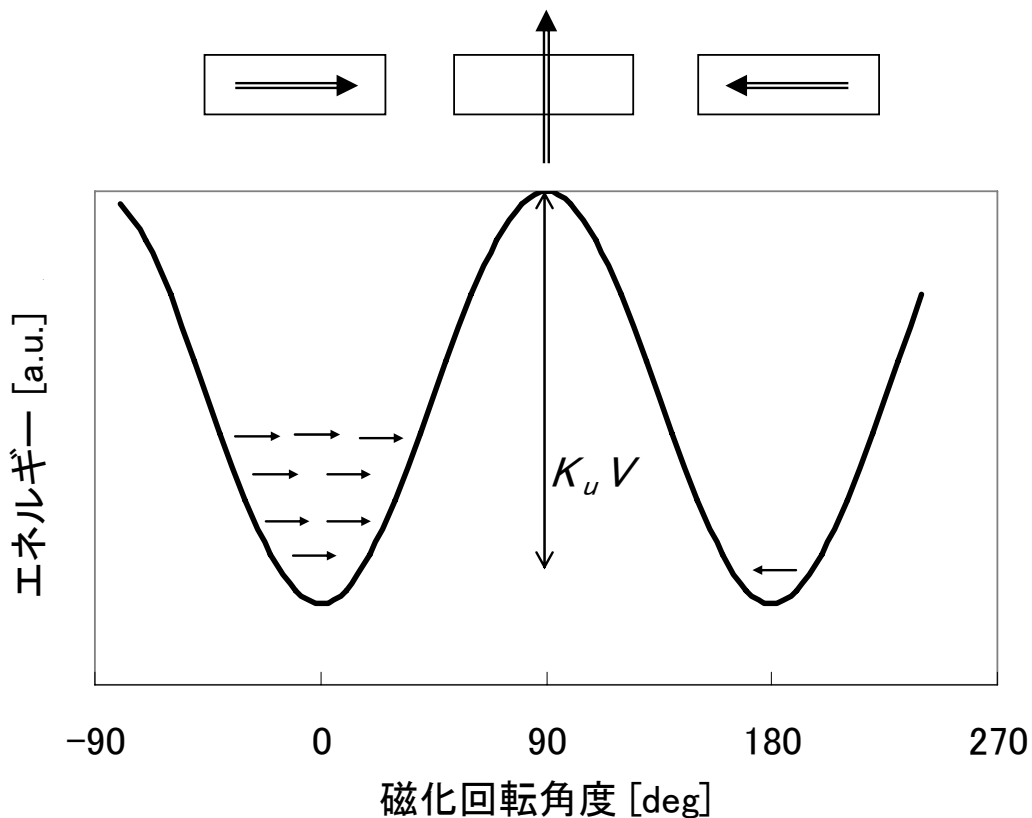


図 1.1.2-1 磁化回転と異方性エネルギー

安定な記録状態を維持するためには、粒子の磁気異方性エネルギー K_0 を高くする必要がある。ところが、磁性粒子の磁気異方性エネルギーを高くすると保磁力 H_c が高くなり、記録が困難になるという問題が存在する。これを解決する方法の一つが、記録に用いる磁極材料の高飽和磁束密度化である(図 1.1.2-2 参照)。即ち、媒体の高記録密度化を実現するためには、記録に用いる磁性粒子の微細化が必要であり、微細な磁性粒子を用いても記録状態が熱揺籃によって情報消失を起こさないためには、磁性粒子の異方性エネルギーを増大させる必要があり、異方性エネルギーの高い磁性粒子に記録するためには、記録ヘッド用磁極材料の高飽和磁束密度化が必要となる。これらを実現することによって、システムとしての記録密度向上を実現できることになる。

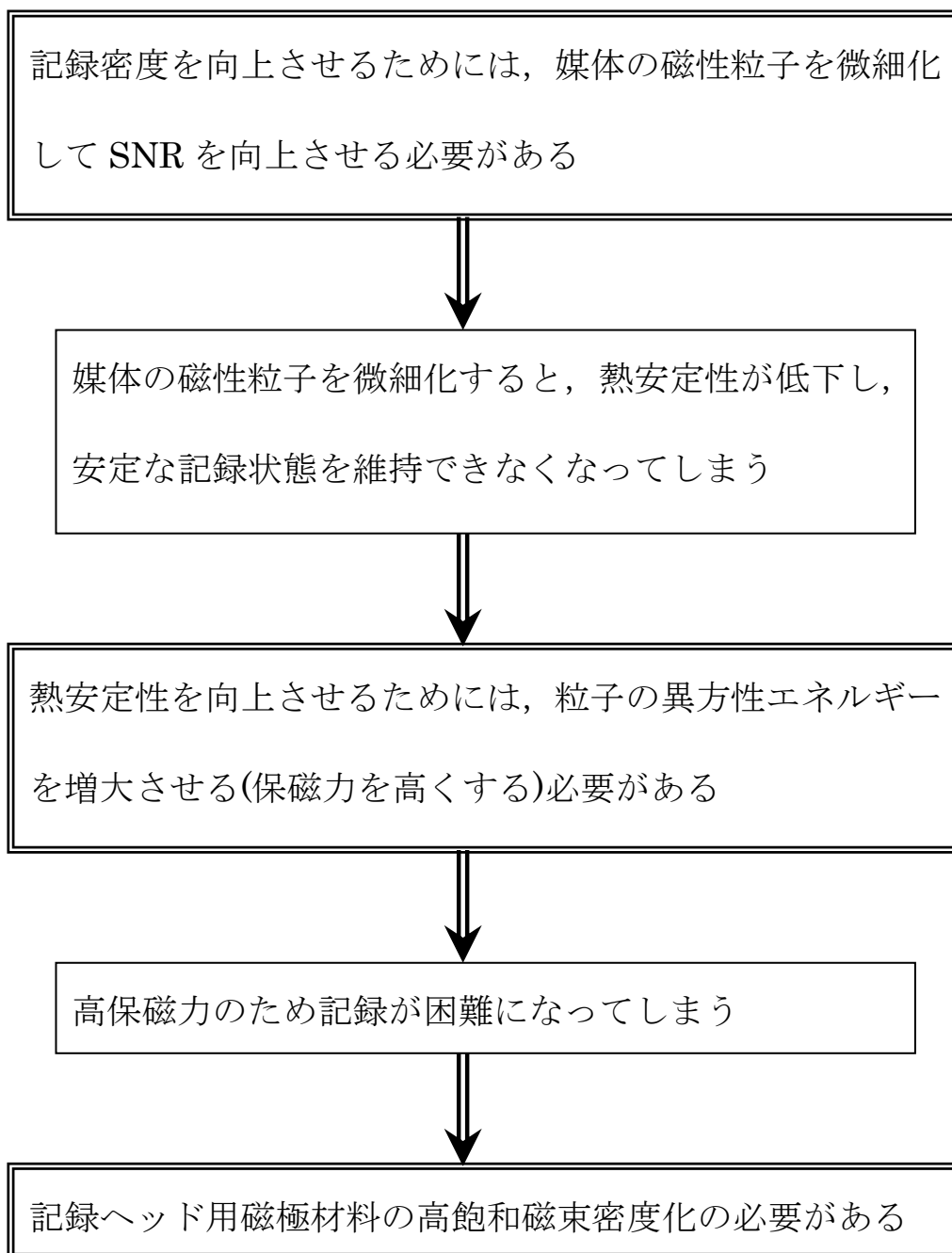


図 1.1.2-2 高記録密度化の課題

§ 1.1.3 磁気テープシステムの変遷

磁気記録は、1878年に O. Smith によって原理的な発明が行われたが、音声の記録再生の実演が行われたのは 1898 年の V. Poulsen の針金式の録音器であった。その後、今日の形態に近い形で「磁気テープ」が発明されるまで、30 年近い月日を必要としている。磁気テープとは柔軟な基体上に磁気記録層を形成し、その記録層の上に記録ヘッドや再生ヘッドを摺動させて情報の記録・再生を行うものである。1920 年代後半から音声の記録再生によるラジオ放送の時間シフトを主な目的に開発が進められた。1928 年 F. Pflueger によって塗布型テープとテープレコーダが開発されドイツで特許が取得されている。これは、ベースに紙を利用し、磁性粒子に鉄粉を用いたものであった。その後、1930 年代になると高分子ベースフィルムの上に磁性層を構成するタイプの現在と同様な構成の塗布型テープが作製されている。厚さ 30 μm のセルロースアセテートの上に 20 μm の磁性層(カルボニル鉄粉とセルロースアセテートとを混練したもので構成されたものである[A24])。

初期の頃の磁気記録は、もっぱら、音声情報の記録を目的に開発を進められていたが、1950 年代になると音声以外に、映像情報やコンピュータ用情報の記録用としても磁気テープが使われるようになる。1956 年にアンペックスで開発された 4 ヘッド方式の 2 インチ VTR が商業的に利用された最初の VTR である。その後、今世紀初頭まで、映像記録用として、さまざまなテープフォーマットが提案されてきたが、相当量の情報量をもつ映像情報を一定時間記録するためには、固定ヘッド方式では限界があり、いずれのフォーマットも回転ヘッド方式が用いられている。表 1.1.3-1 に各種の映像記録用磁気テープについての一覧を示す。

コンピュータ用デジタルデータの記録を目的としたテープも古くから開発されていた。1951 年には UNIVAC 用として既に利用されている。世界最初の電子計算機、ENIAC が開発されてから、僅か 5 年後のことである。初期のころは、現代のように大量のデータの保存やバックアップを目的としたものではなく、主に入出力のバッファとして利用されていたようである。1953 年に IBM から 1/2 インチ幅、10.5 インチ径で 3 MByte の容量のオープンテープ(IBM726)が発売されている。その後、記録容量は増加し続け、2010 年には、この数分の一の体積(105.4 mm×102.0 mm×21.5 mm)のカートリッジテープに 1.5TB の容量が実現され (Ultrium LTO-5)、さらに 2011 年には 5 TB もの容量をもつ磁気カートリッジ(T10000C)が実用化された。実に 60 年足らずの間に、 10^6 倍を超える大容量化を実現したことになる。

表 1.1.3-2 に近年の各種コンピュータ用磁気テープの一覧を示す。まず、走行方式として、回転ヘッドを用いた「ヘリカル」スキャン方式(図 1.1.3-1 参照)と、固定ヘッドでサーペンタイン走行を行う「リニア」方式(図 1.1.3-2 参照)に大別することができる。

ヘリカルスキャン方式は、隣接する記録トラックを異なったアジマスで記録することによって、トラック間にガードバンドを必要とせず、トラックピッチを小さくできる特徴があり、リニア方式と比較して面記録密度を高くとることができる。一方リニア方式は、記録素子や再生素子がインラインに並んだ薄膜磁気ヘッドを用いるため、多チャンネル化が容易であり、ヘリカル方式と比べて単位時間あたりに記録可能なデータ量の向上が容易であるという特徴がある。2007 年に発売されたヘリカル方式の S-AIT-2 と 2008 年に発売されたリニア方式の T1000B 比較してみる(表 1.1.3-2 参照)。S-AIT-2 は T1000B の 70 %のテープ面積に 80 %の情報を記録している。即ち、先に発売された S-AIT-2 のほうが、高い面記録密度を実現していることになる。一方、S-AIT-2 のデータ転送速度は、45 MB/s であり、800 GB のデータを記録するためには、約 5 時間を必要とするのに対して、120 MB/s を実現している T1000B は 2 時間 20 分程度で 1000 GB のデータ記録が可能となる。今後の大容量化を考えた場合、実用的時間内で記録・再生を行うことは重要な条件であり、リニア方式がコンピュータ用磁気テープの中心となっていく。但し、リニア方式で大容量化を進めるためには、一定の規模のテープ面積が必要となる。これを実用的コストで実現するためには、塗布型で実現することが好ましく、表 1.1.3-2 から明らかなように、現時点において、リニア方式でコンピュータ用磁気テープとして実用化されているものは、全て塗布型テープであり、今後もコスト・容量、両面において塗布型テープの優位性は続くものと考えられる。

塗布型磁気テープ用磁性粒子は酸化鉄、酸化クロム、コバルト添加酸化鉄[A25]～[A31]、メタル(Fe 及び FeCo 合金)[A32]～[A36]と変遷を辿りながら、磁気特性としては高保磁力化され、粒子サイズは微細化されてきた。近年の塗布型テープは、保磁力が 2500 Oe を超え、磁性粒子サイズは数十 nm と小さくなり、表面性の大幅な平滑化が図られているが、基本的には初期のころと同様な構成で、磁性粒子をバインダー中に分散させ、ベースフィルム上に塗布することによって製造されている。従って、蒸着テープやスパッタテープと異なり、大気圧環境で製造可能で、大面積を必要とする磁気テープにとっては、最も大量生産に適した形態である。塗布型テープの大容量化をここまで可能にした技術の一つが、1990 年代に開発された磁性層の極薄塗布技術[A37]、[A38]である。これにより、デジタル情報記録用として著しい性能向上を果たし、今日の高容量コンピュータ用磁気テープの礎となった。近年では塗布工程で磁性層厚、数十 nm のもの

も量産されており、今後もさらなる高容量化が期待されている。

表 1.1.3-1 映像用磁気テープ

システム	テープ幅	アナログ/ デジタル	テープタイプ	保磁力 [Oe]	発売年
2 インチ	2 in	アナログ	酸化鉄	250	1956
U 規格	3/4 in	アナログ	酸化クロム	550	1969
BETAMAX	1/2 in	アナログ	酸化鉄	600	1975
C フォーマット	1 in	アナログ	酸化鉄	500	1976
VHS	1/2 in	アナログ	酸化鉄	650	1976
BETACAM	1/2 in	アナログ	酸化鉄	600	1982
MII	1/2 in	アナログ	メタル	1550	1985
8mm	8mm	アナログ	メタル/蒸着	1450/1050	1985
BETACAM SP	1/2 in	アナログ	メタル	1500	1987
D1	3/4 in	デジタル	酸化鉄	850	1987
D2	3/4 in	デジタル	メタル	1500	1988
D3	1/2 in	デジタル	メタル	1600	1991
Digital BETACAM	1/2 in	デジタル	メタル	1570	1994
D5	1/2 in	デジタル	メタル	1600	1995
DVCPRO	1/4 in	デジタル	メタル	2300	1995
DVC	1/4 in	デジタル	蒸着	1500	1995
Digital S	1/2 in	デジタル	メタル	1800	1996
BETACAM SX	1/2 in	デジタル	メタル	1500	1996
DVCAM	1/4 in	デジタル	蒸着	1500	1996
HDCAM	1/2 in	デジタル	メタル	1650	1998

表 1.1.3-2 コンピュータ用磁気テープ

	方式	製法	磁性体	テープ幅	テープ長 [m]	非圧縮最大容量[GB]	転送速度 [MB/s]	発売年
AIT-5	ヘリカル	蒸着	Co-O	8mm	246	400	24	2006
S-AIT-2	ヘリカル	蒸着	Co-O	1/2 in	640	800	45	2007
T10000B	リニア	塗布	Fe-Co	1/2 in	917	1,000	120	2008
IBM3592 JB /TS1130	リニア	塗布	Fe-Co	1/2 in	825	1,000	160	2009
DAT320R	ヘリカル	蒸着	Co-O	8mm	153	160	12	2009
LTO5	リニア	塗布	Fe-Co	1/2 in	846	1,500	140	2010
T10000C	リニア	塗布	Barium ferrite	1/2 in	1,147	5,000	240	2011

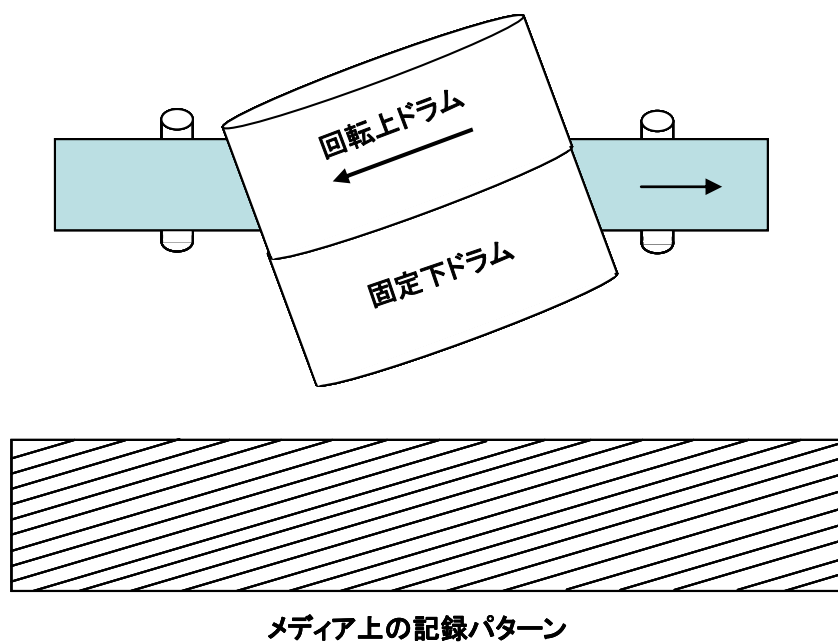


図 1.1.3-1 回転ヘッドのヘリカルスキャン方式

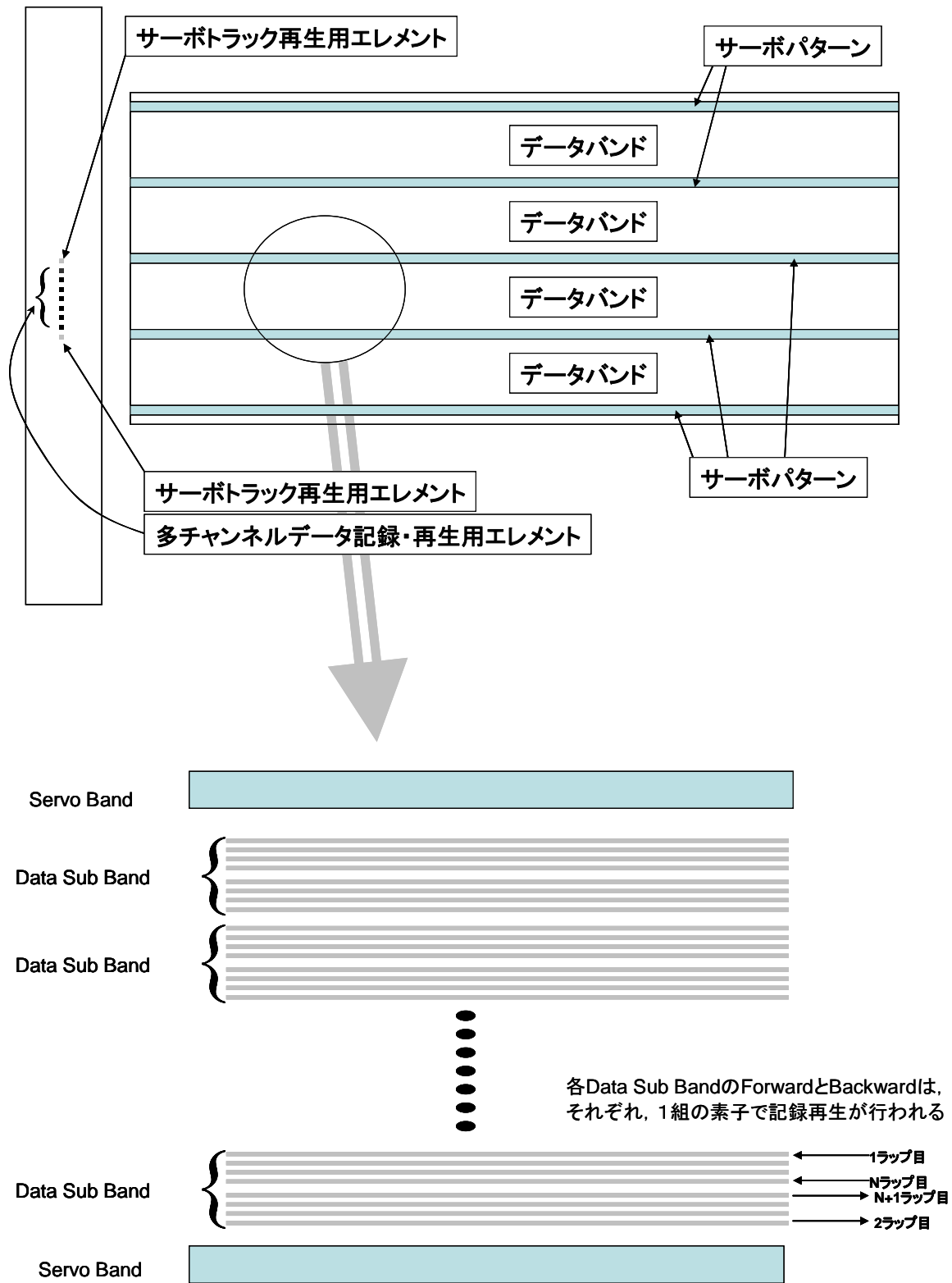


図 1.1.3-2 固定ヘッド，サーペンタイン走行の「リニア」方式

§ 1.1.4 磁気ヘッド用磁極材料

§ 1.1.2 で述べたように、磁気記録システムの高密度化を進めていくためには、磁気ヘッド用磁極材料の高飽和磁束密度化が重要である。これ以外に、磁気ヘッド用磁極材料に期待される特性は軟磁気特性、即ち、低保磁力、高透磁率である。また、テープとの摺動で磨耗しないことや使用環境において腐食せず化学的に安定であることも求められる。さらに、狭トラック化の進展に伴い、磁気ヘッドは、薄膜コアを用いたものが必須となっており、従来のバルク材とは異なり、薄膜としての成膜性の高さも重要な要求項目である。軟磁性フェライトは保磁力も低く電導性が低いため渦電流損失がなく高周波まで高透磁率を維持でき、さらに対磨耗性に優れていることから、磁気ヘッド用材料として大変優れた素材であった。しかし、飽和磁束密度が 5 kG 程度であり、近年の保磁力が 2 kOe を超える媒体に記録することは出来ない。そのため、さらに高飽和磁束密度の軟磁性材料が必要である。高飽和磁束密度を有し、保磁力が低く、透磁率が高い薄膜の金属磁性材料としては、パーマロイ(FeNi 合金)やセンダスト(FeAlSi 合金)などの結晶性材料と CoZrNb や CoZrTa などの Co 系アモルファス材料がある。結晶性材料で軟磁気特性を発現させるためには、結晶磁気異方性と磁歪が共にゼロ付近の組成を選択する必要がある、組成選択の自由度は低く、軟磁性が得られる組成は、パーマロイの場合は Ni-21.5%Fe(wt%)、センダストの場合は Fe-9.6%Al-5.4%Si(wt%)近傍に、一義的に決定されてしまう。従って、飽和磁束密度も、その組成に依存して確定してしまう。実際パーマロイやセンダストの場合飽和磁束密度は高々10kG である。一方アモルファス材料の場合、保磁力に対する結晶磁気異方性の寄与はなく、磁歪のみに注目して組成が選択できる。このため、比較的広い組成範囲で軟磁性を得ることが可能となる。実際 CoNbZr などは 13kG 程度の飽和磁束密度と極めて低い保磁力を示すものも容易に作製可能である。しかし 350 °Cを超えるような熱プロセス耐性がなく、ヘッド製造上での自由度が下がらざるを得ない。今後、記録用媒体の更なる高記録密度化(即ち高保磁力化)を進めていくためには、耐熱性が高く、パーマロイやセンダストを凌駕する飽和磁束密度を有する磁極材料が必要である。

第2節 本研究の目的

本研究の目的は、情報ストレージシステムの中でも、特に単位体積あたりの記録容量が大きい、磁気テープを用いたストレージシステムの更なる高容量化のための要素技術の研究であり、次の①、②を達成することである。

- ① 高密度記録を可能にする高保磁力媒体に記録するための記録ヘッド用磁極材料、即ち、高飽和磁束密度を有する軟磁性薄膜材料を開発すること。ここでは、特に磁気ヘッド製造プロセスの自由度を高めるために、素材としての耐熱性も併せ持つ高飽和磁束密度軟磁性材料を開発することを目的とする。
- ② 記録密度を飛躍的に高めることが可能な磁気テープシステム用媒体を開発すること。ここでは、実用的観点から単位情報量あたりのコストも重要である。従って、スパッタ媒体や蒸着媒体のような真空プロセスを必要とするものではなく、大気中での塗布プロセスで製造可能な、高記録密度薄層塗布型媒体を開発することを目的とする。

本論文の概要を章ごとに述べると以下の通りである。

第1章 序論

本研究の背景、目的、を述べたものである。

第2章 高飽和磁束密度耐熱性軟磁性材料

本研究の主要な課題の一つである磁気ヘッド用高飽和磁束密度軟磁性材料の開発に関する研究である。具体的には、結晶磁気異方性の影響を排除し、軟磁気特性を出現させる研究に関するものである。ここでは2つのアプローチについて議論する。

第1のものは、特定の結晶方位へ配向させることで、磁化回転に伴うエネルギーの増減を低減し、保磁力を小さくする試みである。この方法では、純鉄に近い組成で、保磁力が1 Oe程度の軟磁性が得られるとの計算結果を示す。

第2の方法は、交換結合で相互作用を及ぼしあう微結晶薄膜を作製し、結晶磁気異方性の影響を排除する方法の検討である。この方法では、窒素を用いる方法と硼素を用いる方法で15~18 kGの飽和磁束密度を有し、500 °C以上の耐熱性を持つ軟磁性薄膜を開

発し、その特性の詳細を明らかにする。

また、この章では、軟磁性薄膜開発に重要な役割を果たす磁歪測定方法についても議論する。ここでは、ヤング率などの弾性的物性値が未知の新規薄膜材料に対して磁歪定数を定量する方法について議論する。

第3章 高記録密度薄層塗布型磁気媒体

本研究の二つ目の課題である、高記録密度薄層塗布型媒体の開発に関する研究である。

最初に、現在の主流であるメタル媒体について、その薄層化の効果について、シミュレーション結果に基づいて議論する。ここでは、薄層化に伴い、記録層内部での反磁界が低下するため、再生出力は保磁力よりも記録層の磁束密度に、大きく依存すること、また、保磁力が 2500 Oe 以上の媒体に記録するためには、記録ヘッドの磁極材料として少なくとも 15 kG 以上必要なことを示す。また、膜厚方向の配向分散は角型比を低下させるにも関わらず、再生出力を向上させることも示す。

次に、磁性粒子としてバリウムフェライト(Ba-ferrite)を用いた媒体によって、高記録密度を達成する研究である。ここでは、粒子のサイズの影響、配向の影響、異方性磁界分布の影響、摺動性の影響などについて、シミュレーション及び実験により詳細に議論し、システムとして高記録密度を達成するために必要な媒体を実現し、飛躍的な高記録密度実現の指針を明確にする。また、実用的観点からの化学的安定性や熱的安定性についても議論する。これらによって、十分な化学的・熱的安定性を備えた媒体で、面記録密度 29.5 Gbit/in² を実現しうることを示す。これは、最新のメタル媒体で実現されている 1.2 Gbit/in² の実に 24 倍を越える値である。

第4章 総括

本研究を総括する。

第2章 高飽和磁束密度耐熱性軟磁性材料

第1節 緒言

本章では、高密度記録を可能にする高保磁力媒体への記録を可能にする記録ヘッド用磁極材料として、高飽和磁束密度であり、且つ、磁気ヘッドの製造プロセス上自由度が高い、高耐熱性の軟磁性薄膜材料を開発することを目的としている。そのため、下記について論じる。

- ① 薄膜であることの特徴を利用し、立方晶からなる Fe の配向を制御することで、結晶磁気異方性の影響を抑え、純鉄に近い組成で、純鉄の飽和磁束密度を極力損なうことなく、軟磁気特性を得ることの理論的検討を行い、推定される性能を明らかにする。
- ② 上記と同様に、純鉄(bcc の α -Fe)を主成分とすることによって、飽和磁束密度は純鉄の値に近いレベルを維持し、結晶粒サイズを微細化し、ランダムに配向した微細結晶粒が交換結合で相互作用を及ぼしあう程度に近接した状態を実現し、同一磁区内における磁化回転で実質的に結晶磁気異方性に伴うエネルギーの増減をなくすことによって軟磁気特性を得ることの実験的検討を行う。即ち、熱的に安定な結晶状態でありながら、アモルファスのように、結晶磁気異方性の影響を実質的に受けない状態を実現し、高飽和磁束密度、高耐熱性で、高い軟磁気特性を持つ薄膜を開発し、その評価、検討を行う。
- ③ 軟磁性材料を開発する上で重要な要素となる磁歪について、その測定法について検討する。磁歪とは、磁化方向の変化に伴う形状の変化(伸縮)であり、基板に束縛された薄膜の磁歪は、磁化に伴う基板全体の変形を、光歪などを用いて測定し、ヤング率等の物性値に基づいて、磁化と変形(歪)の関係を求めることによって測定することができる。しかし、新規組成系材料で薄膜状態でのみ存在するような微細構造を有する素材に対して、ヤング率を測定することは容易ではない。そこで、ヤング率などが未知な素材に対して、磁歪を測定する方法について検討する。

第2節 背景

§ 2.2.1 はじめに

軟磁性材料とは、比較的弱い外部磁界で、磁化の方向を、自由に回転することができる材料である。磁化の方向は、外部磁界による静磁気エネルギーと内部エネルギーの総和が極小となるような方向が安定な方向であり、もし磁化回転に伴い、内部エネルギーの増減が発生しなければ、弱い外部磁界であっても、磁化の方向を自由に回転することができる。即ち、磁化回転に伴う内部エネルギーの増減をなくすことが、優れた軟磁性材料を得ることになる。また、磁気ヘッド用軟磁性材料の場合、高保磁力な媒体への記録を実現するために、飽和磁束密度が高いことも重要な要素となる。飽和磁束密度が最も高い純金属は鉄(Fe)であり、その飽和磁束密度は、約 21 kG である。また、鉄-コバルト合金ではスレーターポーリング曲線のピークの値が得られ、24 kG を超える飽和磁束密度を有することが知られている[B1]。しかし、Fe に、Co や Ni 以外の非磁性元素を添加すると飽和磁束密度は急激に低下してしまう。従って、Fe や FeCo 合金に近い組成(極力非磁性添加元素が少ない Fe 及び FeCo 基合金)で、磁化回転に伴う内部エネルギーの増減が発生しない薄膜を開発することが、本章の目的となる。

軟磁性を示す薄膜として知られている代表的なものは、パーマロイ(Ni-Fe 合金)やセンダスト(Fe-Al-Si 合金)である。しかし、これらの薄膜の飽和磁束密度は、高々 10 kG 程度である。これは、結晶磁気異方性と磁歪がともにゼロ近傍になるように組成が選択された結果である(単磁区であれば、結晶磁気異方性と磁歪がともにゼロであれば、磁化回転に伴う内部エネルギーの増減は発生しない)。一方、結晶磁気異方性を考慮することなく組成選択が可能な軟磁性材料として Co 系アモルファスが上げられる。これは、結晶としての長距離の秩序を持たないため、結晶磁気異方性に依存する磁化回転時のエネルギーの増減が存在しない。そのため、磁歪のみに注目して組成選択が可能であり、組成を Co に近づけ、Zr, Nb, Ta などの添加元素の量を調整することによって、14 kG 程度の飽和磁束密度を有する軟磁性薄膜の作製が可能である[B2]。しかし、添加元素の量を減らし過ぎると、アモルファス化が困難になる。冷却した基板上にスパッタ法などで成膜すればアモルファス化は可能な組成範囲は広がるが、あまり減らしすぎると、比較的低温で結晶化してしまうため、実用的には飽和磁束密度で 13 kG 程度を得ることが限界である。

一方、純鉄をスパッタ法で作製すると、多く場合、膜の磁歪は負になるが、微量の添加元素で、ゼロを跨いで、正へと変化していくことが期待できる。即ち、純鉄に比較的近い組成で磁歪はゼロ近傍に制御することが可能であり、結晶材料であれば、熱的安定性も高いことが期待できる。従って、この組成域で、磁化回転時に結晶磁気異方性がエネルギーを増減させないような状態が実現できれば、高飽和磁束密度の軟磁性材料が実現できることになる。

§ 2.2.2 結晶磁気異方性と保磁力

結晶中での磁化の向きによって、内部エネルギーは変化する。結晶磁気異方性とは、この内部エネルギーの差によってもたらされるものである。磁化の方向が向き易い結晶方位を容易軸（内部エネルギーが極小値をちる方位）、向きにくい結晶方位を困難軸（内部エネルギーが極大値をとる方位）という。

(1) 六方晶(一軸異方性)の場合

六方晶の Co は、c 軸が容易軸である。外部磁場の無い状態で容易軸方向に向いている磁化を、外部磁場を印加して、磁化を逆方向に回転させることを考える。磁化方向と c 軸(容易軸)との成す角を θ , c 面内の方位角を ϕ とすると、結晶の対象性から

$$\begin{aligned} E_a &= K_{u1} \sin^2 \theta + K_{u2} \sin^4 \theta + K_{u3} \sin^6 \theta + K_{u4} \sin^6 \theta \cos^6 \phi + \dots \\ &= \frac{1}{2} K_{u1} (1 - \cos 2\theta) + \frac{1}{8} K_{u2} (3 - 4 \cos 2\theta + \cos 4\theta) \\ &\quad + \frac{1}{32} K_{u3} (10 - 15 \cos 2\theta + 6 \cos 4\theta - \cos 6\theta) (1 + \cos 6\phi) + \dots \end{aligned} \quad (2-1)$$

と展開できる。定数項を無視し、方位角 ϕ にも依存しないと仮定する(一軸異方性と仮定する)と

$$\begin{aligned} E_a &= K_{u1} \sin^2 \theta + K_{u2} \sin^4 \theta + K_{u3} \sin^6 \theta + K_{u4} \sin^6 \theta \cos^6 \phi + \dots \\ &= -\frac{1}{2} (K_{u1} + K_{u2}) \cos 2\theta + \frac{1}{16} (2K_{u2} + 3K_{u3}) \cos 4\theta + \dots \end{aligned} \quad (2-2)$$

となる。これらの係数 K_{u1} , K_{u2} , K_{u3} , ... を一軸異方性定数という。 $\cos 4\theta$ 以降の項が無視できる程度に小さいとし、外部磁界を初期磁化方向と逆向きに掛けたときのエネルギー $E_h = MH \cos \theta$ との総和

$$E_{\text{total}} = MH \cos \theta - \frac{1}{2}(K_{u1} + K_{u2}) \cos 2\theta \quad (2-3)$$

が、全エネルギーとなる。 $\theta = 0$ 方向に磁界を印加していくと、ある磁界で、この値 E_{total} が極小値から極大値に変化する。この時、磁化反転が発生する。つまり、その磁界が保磁力 H_c となる。従って

$$\left. \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} E_{\text{total}} \right|_{\theta=0} = [-MH_c \cos \theta + 2(K_{u1} + K_{u2}) \cos 2\theta]_{\theta=0} = 0 \quad (2-4)$$

であり、一軸異方性材料の保磁力は、単磁区構造の場合、容易軸方向 ($\theta = 0$) で

$$\therefore H_c = \frac{2(K_{u1} + K_{u2})}{M} \quad (2-5)$$

で与えられる。 $\theta = 0$ 以外の方向では、この値より小さくなる。

(2) 立方異方性の場合

例えば鉄 ($\alpha\text{-Fe}$) は体心立方 (bcc) である。立方晶の場合 a 軸, b 軸, c 軸全てが等価であり、当然反対方向 (±両方向) に対しても等価であるから、結晶磁気異方性エネルギーも、これら対称方向に対して等価にならなければならない。これらを考慮すると、異方性エネルギーは

$$E_a = K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) + K_2\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + K_3(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2)^2 + \dots \quad (2-6)$$

と表現される。ここで、 $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$ は磁化の 3 つの結晶軸への方向余弦で、 K_1, K_2, K_3, \dots は立方異方性定数とう。仮に、 K_1 が正で、 K_2, K_3 が無視できる程度

に小さいとすると, [100]方向のエネルギー $E_a([100])=0$ ($\because \alpha_1=1, \alpha_2=\alpha_3=0$) は, [111]方向のエネルギー $E_a([111])=+(1/3)K_1$ ($\because \alpha_1=\alpha_2=\alpha_3=1/\sqrt{3}$), よりも低く, 安定であるので, 容易軸は a 軸, b 軸, c 軸となり, [111]方向が困難軸となる. この場合も六方晶の場合と同様, 外部磁界による静磁気エネルギーとの総和が極小値を与えるところに磁化が配向するとして, 磁化方向を計算することができる. 例えば, (001)面内での回転を考える. 今, 磁化方向が容易軸である [100]に向いており, この逆方向に外部磁界 H を印加する, $\alpha_3=0$ であるから, [100]方向と磁化方向の成す角を ϕ とすると $\alpha_1=\cos\phi, \alpha_2=\sin\phi$ であり, 全エネルギーは,

$$\begin{aligned} E_{\text{total}} &= MH \cos\phi + K_1(\sin\phi \cos\phi)^2 + K_3(\sin\phi \cos\phi)^4 \\ &= MH \cos\phi + \frac{1}{4}K_1 \sin^2 2\phi + \frac{1}{16}K_3 \sin^4 2\phi \end{aligned} \quad (2-7)$$

となる.

一軸磁気異方性の時と同様に, $\phi=0$ で極小値から極大値に変化する瞬間の磁界を保磁力 H_c とすると,

$$\left. \frac{\partial^2 E_{\text{total}}}{\partial \phi^2} \right|_{\phi=0} = \left[-MH_c \cos\phi + 2K_1 \cos 4\phi + (\dots\dots)K_3 \sin^2 2\phi \right]_{\phi=0} = 0 \quad (2-8)$$

従って(001)面内で回転する立方晶異方性材料の保磁力は

$$\therefore H_c = \frac{2K_1}{M} \quad (2-9)$$

で与えられる. 立方晶については, 回転面を何処にとるかによって保磁力の値が異なる. また, 必ずしも, 一つの面内での回転になるとは限らず三次元的な空間での回転となる場合もある. これらの扱いについては, 第3節で詳細に議論する.

§ 2.2.3 磁歪と保磁力

磁歪とは、磁化の向きに応じて、磁性体の長さが変化する現象である。磁化した方向に長くなる場合、正の磁歪、逆に、磁化した方向に縮む場合、負の磁歪と定義される。消磁された状態と、一方向に飽和磁化された状態の磁化方向の長さの変化率が飽和磁歪と呼ばれ、鉄系の磁性体では $10^{-5} \sim 10^{-6}$ 程度の値を示す。つまり、1 m に対して $1 \mu\text{m}$ から $10 \mu\text{m}$ 程度の長さの変化を示す。逆に、磁性体に歪を与えると、磁気モーメントが回転し、一定方向に向きやすい状態になる。磁歪が正の材料は、伸びた方向が容易軸で、その直交方向が困難軸となる。今、消磁された球形状の磁性体を考える。消磁された状態とは、巨視的な磁化を持たない状態であるが、微視的には各所で磁区を形成し、その磁区内では、一方向に自発磁化を有している。すなわち、それぞれの自発磁化の方向に歪を内在させた状態である。この時、磁界を印加すると、それぞれの方向に配向していた各所の磁化が印加磁界方向に整列する。その結果、磁歪が正であれば、球全体としては、印加磁界方向に伸びると同時に、その直交方向では、縮むことになる。(図 2.2.3-1 参照)

もし、形状が等方的でヤング率などの弾性定数にも方向依存性が無い磁性体を想定するならば、ゼロでない有限な磁歪が存在しても、(形状変化に伴う内部摩擦が無視できるならば)磁化回転に伴うエネルギーの増減はない。従って、回転する外部磁界で飽和した状態の磁化を回転させる場合は、エネルギーの増減を伴わない自由回転になる。しかし、例えば、基板に束縛された薄膜で、所定の方向(x 方向とする)に、張力 σ で引っ張られた状態の磁性薄膜を想定してみる。もし、この磁性薄膜の磁歪が正の値を持つと仮定すると、この磁性薄膜の磁化方向が x 方向と一致するときは、その直行方向(y 方向)に磁化が向いているときよりもエネルギーが低い状態となる。磁化の向きと x 方向(伸びた方向)との成す角を θ とすると、この時のエネルギーは

$$E = -\frac{3}{2} \lambda \sigma \cos^2 \theta \quad (2-10)$$

となる[B3]。外部磁界 H を -x 方向に印加した場合の全エネルギーは

$$E = MH \cos \theta - \frac{3}{2} \lambda \sigma \cos^2 \theta \quad (2-11)$$

$\theta = 0$ で極小値から極大値に変化する瞬間の磁界が x 方向での保磁力 H_c となり,

$$\left. \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} E_{\text{total}} \right|_{\theta=0} = [-MH_c \cos \theta + 6\lambda\sigma \cos 2\theta]_{\theta=0} = 0 \quad (2-12)$$

従って保磁力は

$$H_c = \frac{6\lambda\sigma}{M} \quad (2-13)$$

で与えられる.

要求される飽和磁歪の値は膜のヤング率にも依存するが, 一般に 1×10^{-6} 以下すなわち, 10^{-7} 台であれば, 0.1 Gdyne/cm^2 程度の張力が印加された場合でも, 1 Oe 程度となり, 軟磁性材料として十分利用可能なレベルになる.

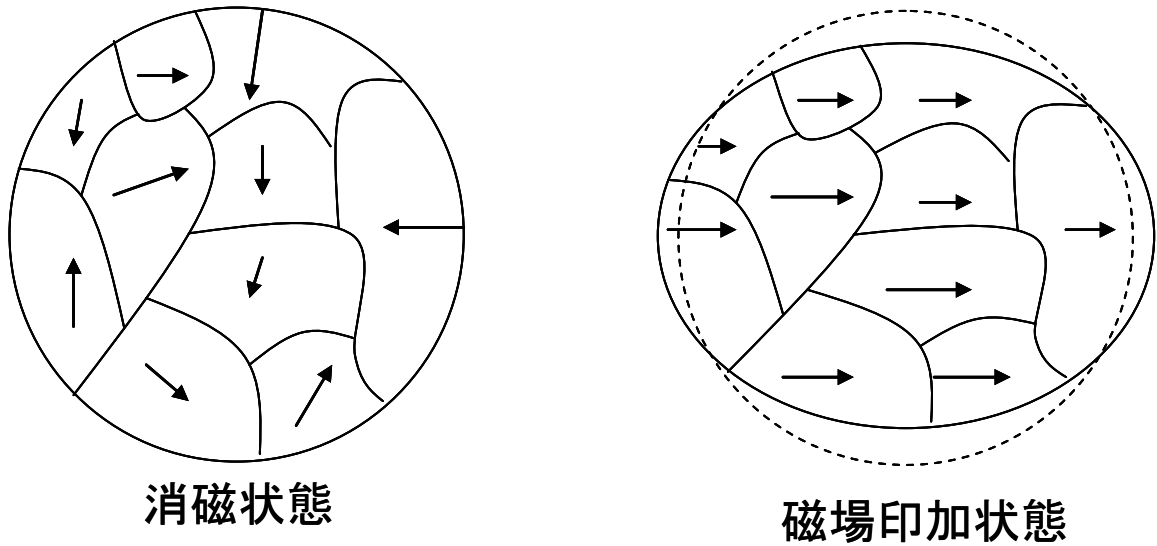


図 2.2.3-1 消磁状態と, 磁場印加状態の概念図

第3節 立方晶磁性材料の配向制御による軟磁気特性

§ 2.3.1 はじめに

ここでは、純鉄に近い組成で、Fe の持つ結晶磁気異方性の保磁力に対する影響を小さくすることによって軟磁性を得る試みの一つとして、bcc-Fe の配向方向を制御した薄膜の軟磁性について論じる[B4].

一般に、立方晶の(111)配向膜では、もし、磁気モーメントをその面内でのみ回転させることができれば、その対象性から結晶磁気異方性定数 K_1 (磁化ベクトルの結晶軸に対する方向余弦の 4 次の項)や、 K_3 (磁化ベクトルの結晶軸に対する方向余弦の 8 次の項)に起因したエネルギーの増減は発生しない[B5]、つまり、 K_1 や K_3 に依存した保磁力はゼロになるはずである。また、純鉄では、 K_2 (磁化ベクトルの結晶軸に対する方向余弦の 6 次の項)は K_1 よりも、2 桁程度小さいため、結晶磁気異方性に起因した保磁力の低減が期待できる。しかし、有限の K_1 のもとでは磁気モーメントの安定方向は面内とは限らず、膜厚方向成分も存在していると考えられる。そこで、(111)配向膜の軟磁気特性を明らかにするため、結晶磁気異方性エネルギー E_c 、形状磁気異方性エネルギー E_a 、外部磁界による静磁エネルギー E_h の影響を考慮し、単結晶配向膜を想定し、一斉回転モデルでの各配向ごとの B - H ループを計算した。その結果、結晶磁気異方性として純鉄程度の異方性を想定した場合でも、十分に薄い(膜厚方向の反磁界定数が 4π と見なせる程度に薄い) 場合には、(111)配向膜で、保磁力は非常に小さく 1 Oe 以下になることが明らかになった。以下、詳細に議論する。

§ 2.3.2 方法

円盤状の薄膜を想定し、図 2.3.2-1 のように x 軸及び y 軸をこの膜の面内に、 z 軸をこの膜面と垂直にとると、単位体積あたりの、結晶磁気異方性エネルギー E_c 、形状磁気異方性エネルギー E_a 、外部磁界による静磁エネルギー E_h はそれぞれ

$$E_c = K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) \quad (2-14)$$

$$E_a = \frac{M^2}{4}(3N_z - 4\pi)\cos^2\theta + \frac{M^2}{4}(4\pi - N_z) \quad (2-15)$$

$$E_h = -\vec{M} \cdot \vec{H} \quad (2-16)$$

で与えられる。ここでは、 α の6次以上の項（即ち K_2 以降の項）は無視している。また、 N_z は膜厚方向の反磁界係数、 α_1 、 α_2 、 α_3 は、磁化ベクトル M の3つの結晶軸への方向余弦で、各々の配向膜ごとに θ 及び ϕ で表現できるものである。

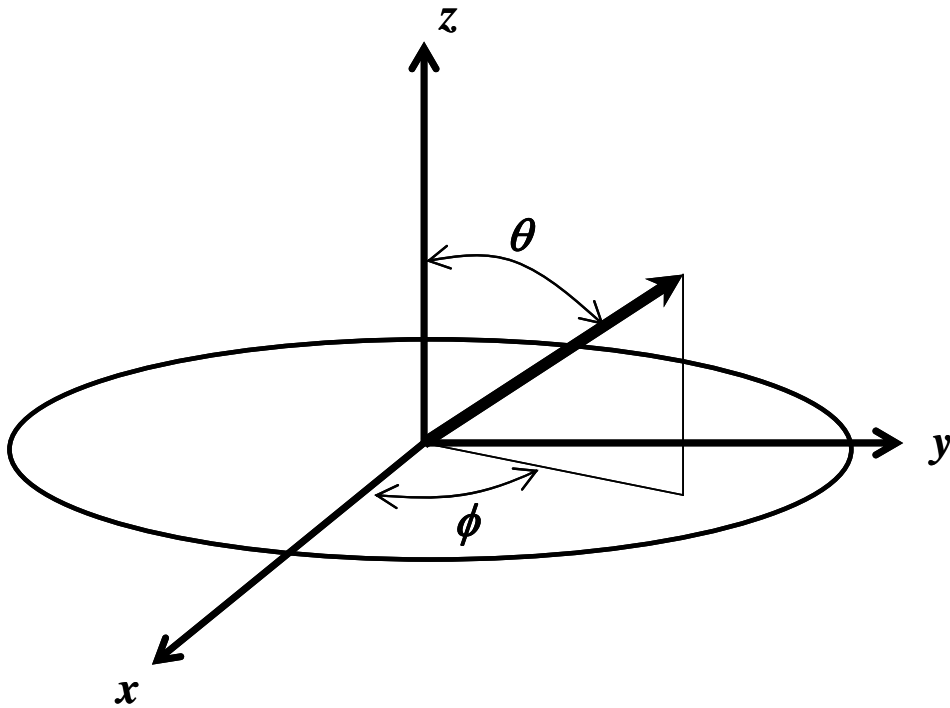


図 2.3.2-1 ここで用いる極座標

具体的には、(100)配向膜の場合、図 2.3.2-2 に示すように、 x, y, z 軸をそれぞれ、 $[100]$ 、 $[010]$ 、 $[001]$ 方向にとって

$$\alpha_1 = \sin\theta \cos\phi \quad (2-17)$$

$$\alpha_2 = \sin\theta \sin\phi \quad (2-18)$$

$$\alpha_3 = \cos\theta \quad (2-19)$$

である。

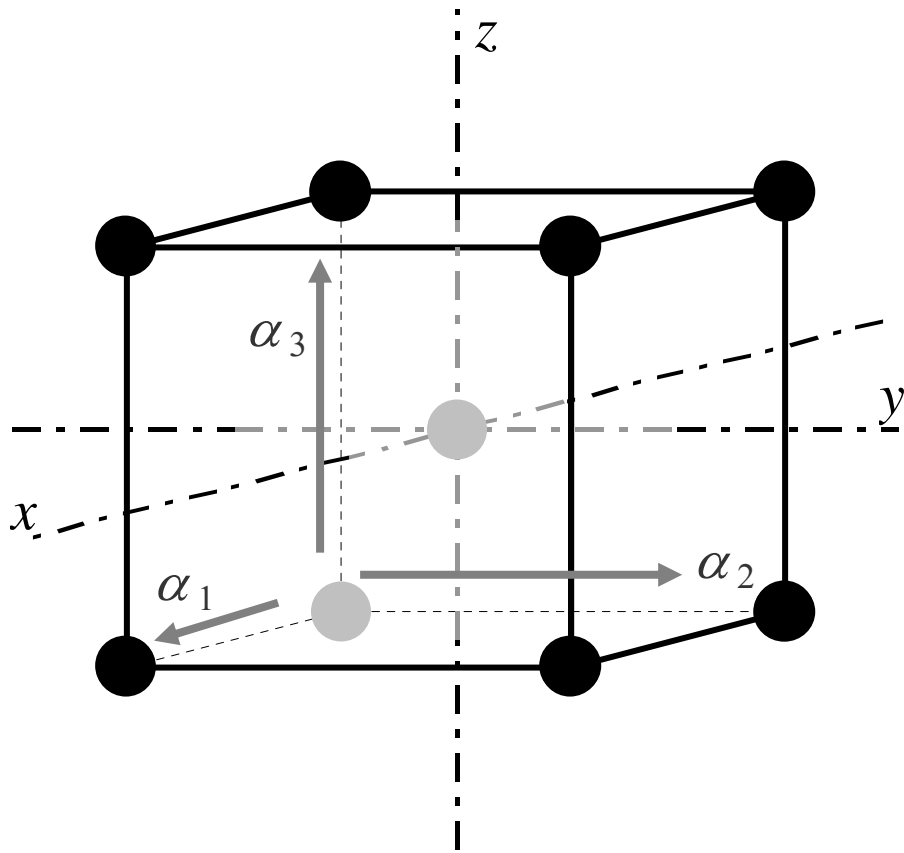


図 2.3.2-2 bcc 結晶の(100)配向膜

また, (110)配向膜の場合, 図 2.3.2-3 に示すように x 軸を $[10\bar{1}]$, y 軸を $[010]$, z 軸を $[101]$ を方向にとると

$$\alpha_1 = +\frac{1}{\sqrt{2}} \sin \theta \cos \phi + \frac{1}{\sqrt{2}} \cos \theta \quad (2-20)$$

$$\alpha_2 = +\sin \theta \sin \phi \quad (2-21)$$

$$\alpha_3 = -\frac{1}{\sqrt{2}} \sin \theta \cos \phi + \frac{1}{\sqrt{2}} \cos \theta \quad (2-22)$$

となる.

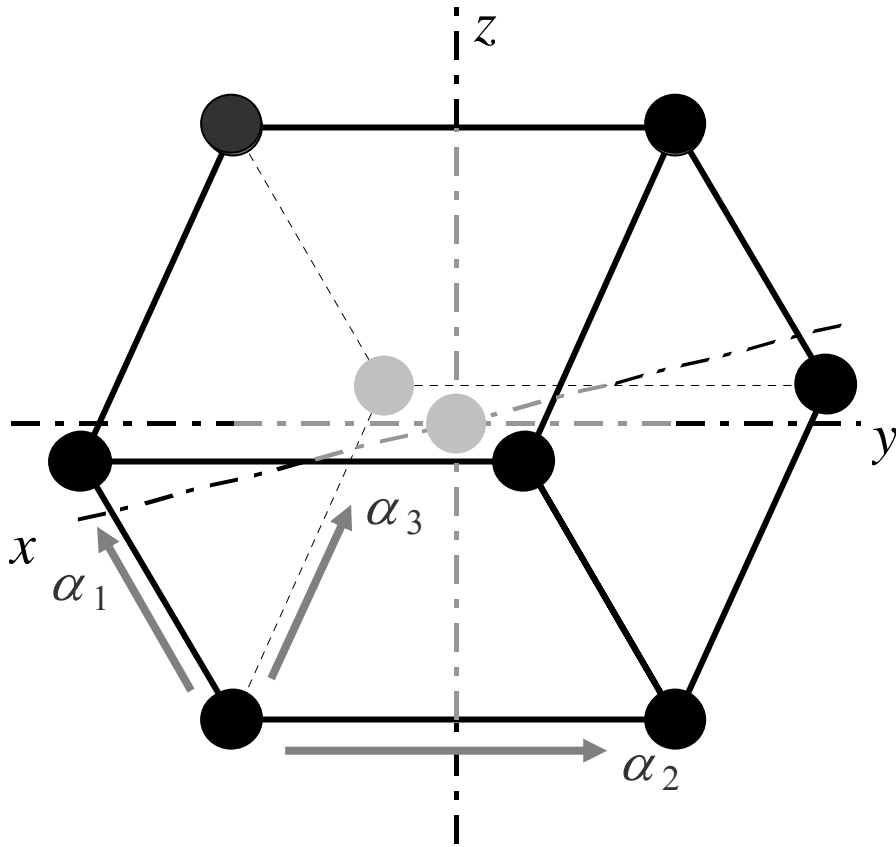


図 2.3.2-3 bcc 結晶の(110)配向膜

さらに(111)配向膜の場合，図 2.3.2-4 のように x 軸を $[11\bar{2}]$ ， y 軸を $[\bar{1}10]$ ， z 軸を $[111]$ を方向にとると

$$\alpha_1 = +\frac{1}{\sqrt{6}} \sin \theta \cos \phi - \frac{1}{\sqrt{2}} \sin \theta \sin \phi + \frac{1}{\sqrt{3}} \cos \theta \quad (2-23)$$

$$\alpha_2 = +\frac{1}{\sqrt{6}} \sin \theta \cos \phi + \frac{1}{\sqrt{2}} \sin \theta \sin \phi + \frac{1}{\sqrt{3}} \cos \theta \quad (2-24)$$

$$\alpha_3 = -\frac{\sqrt{2}}{\sqrt{3}} \sin \theta \cos \phi + \frac{1}{\sqrt{3}} \cos \theta \quad (2-25)$$

となる。

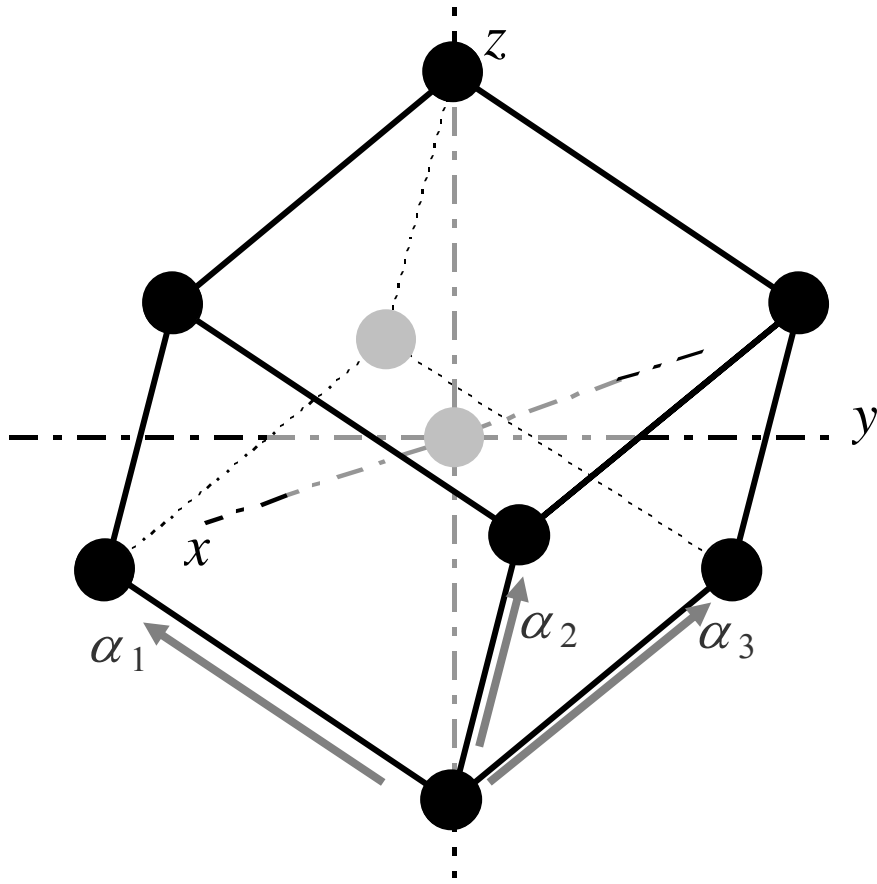


図 2.3.2-4 bcc 結晶の(110)配向膜

これらエネルギーの合計，即ち，式(2-14)，(2-15)，(2-16)の合計

$$E(\theta, \phi) = E_c + E_a + E_h \quad (2-26)$$

に対して，その極小値を与える条件

$$\frac{\partial}{\partial \theta} E(\theta, \phi) = 0 \quad (2-27)$$

$$\frac{\partial}{\partial \phi} E(\theta, \phi) = 0 \quad (2-28)$$

となる, θ, ϕ を求めて, その時の磁化の印加磁界方向成分 M_h を外部磁界 H に対してプロットすることにより $M-H$ の関係を求めることができる. この時の磁化 M に対応する磁束密度 $B(=4\pi M)$ で $B-H$ ループを計算し, 保磁力を求めた.

§ 2.3.3 結果

ここでの計算は磁歪 λ が十分に小さいことが要請されている. そこで, まず, 全ての方向の磁歪がほぼゼロになる組成として, $\text{Fe}_{88}\text{Si}_{12}$ を想定した物性値として, 結晶磁気異方性定数 K_1 と飽和磁束密度 B_s を

$$K_1 = 2 \times 10^5 \text{ [erg/cm]}$$

$$B_s = 17 \text{ [kG]}$$

として計算した.

(1) 十分に薄い薄膜の各配向での $B-H$ ループ

図 2.3.3-1 に(111)配向単結晶膜についての, 十分に薄い($N_z = 4\pi$)の時の $B-H$ ループの計算結果を示す. ここでは, 印加磁界方向は, $[\bar{1}1\bar{2}]$ 方向にとってある. この図から明らかのように, (111)配向膜では, 1 Oe 以下の磁界で磁化回転が発生していることがわかる.

図 2.3.3-2 には(110)配向単結晶膜, 図 2.3.3-3 には(100)配向単結晶膜についての計算結果を示す. 印加磁界方向は, (110)配向膜に対しては, $[\bar{1}11]$ 方向, (100)配向膜に対しては, $[011]$ 方向にとってある. また, (111)配向膜についての結果(図 2.3.3-1)と横軸(保磁力)のスケールが異なって表示されていることに注意されたい. これらの図から明らかのように, (111)配向膜は, 特異的に保磁力が低く, 他の配向膜が 80 Oe 程度であるのと比べて 2 桁以上低い値となっていることが分かる.

図 2.3.3-1 や図 2.3.3-2 で示したように, (111)配向膜や(110)配向膜ではメジャーループ以外にも複数のループが存在している. これらは, エネルギー極小値を与える磁化回転の軌跡が一義的でなく, 複数存在することを意味するものである.

(2) (111)配向膜の保磁力の膜厚依存性

膜厚の変化は垂直方向の反磁界の変化となって形状磁気異方性エネルギーに影響を与える。従って垂直方向の反磁界係数 N_z の変化に対する保磁力の変化を計算した。結果を図 2.3.3-4 に示す。横軸は $N_z/4\pi$ である。すなわち $1/3(=0.333)$ で等方的となる。 $N_z/4\pi=0.2$ を超えると保磁力は急激に上昇してしまうが $N_z/4\pi=0.15$ 程度までは低い値を維持している。

(3) 保磁力の結晶磁気異方性定数 K_1 依存性

図 2.3.3-5 に(111)配向膜, 図 2.3.3-6 に(110)及び(100)配向膜について保磁力の K_1 依存性を示す。ここでは, $B_s=20$ kG, $N_z=4\pi$ とした。1 Oe 以下の保磁力を維持するためには(111)配向膜では 3×10^5 erg/cc 程度以下で良いのに対して, 他の方向の配向膜では, 2桁ほど K_1 を小さくしなくてはならないことがわかる。しかし, (111)配向膜であっても, これを超えて K_1 を大きくしていくと急激な保磁力の上昇が始まる。

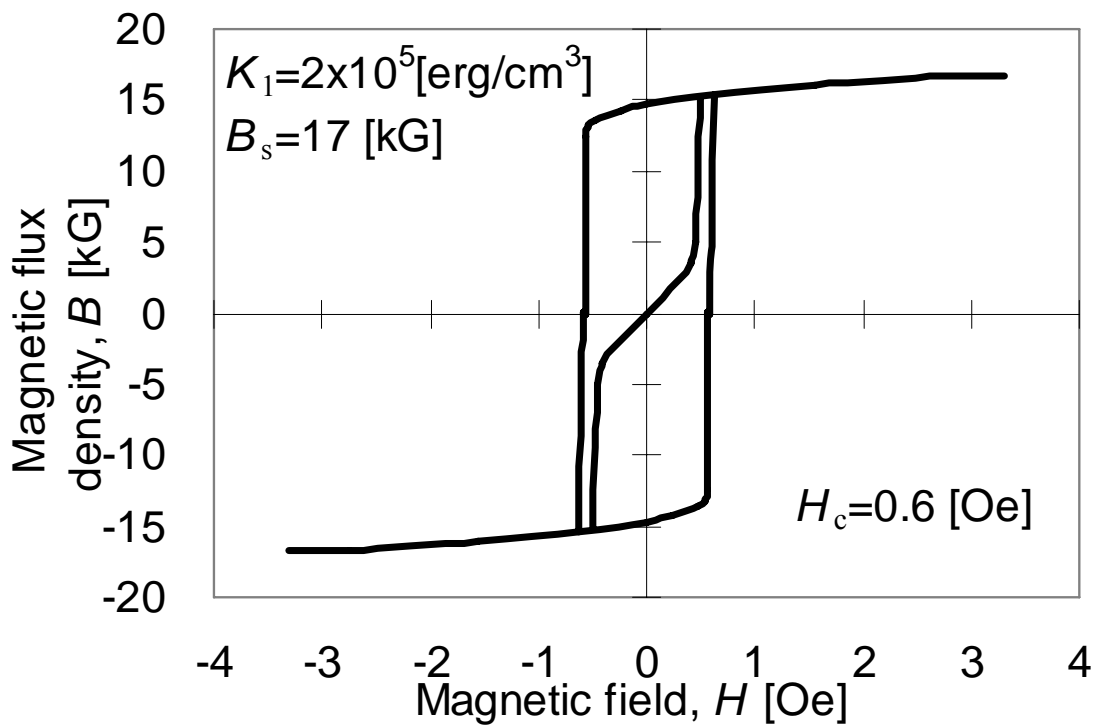


図 2.3.3-1 (111)配向膜の面内磁化回転による B - H ループの計算結果[B4]

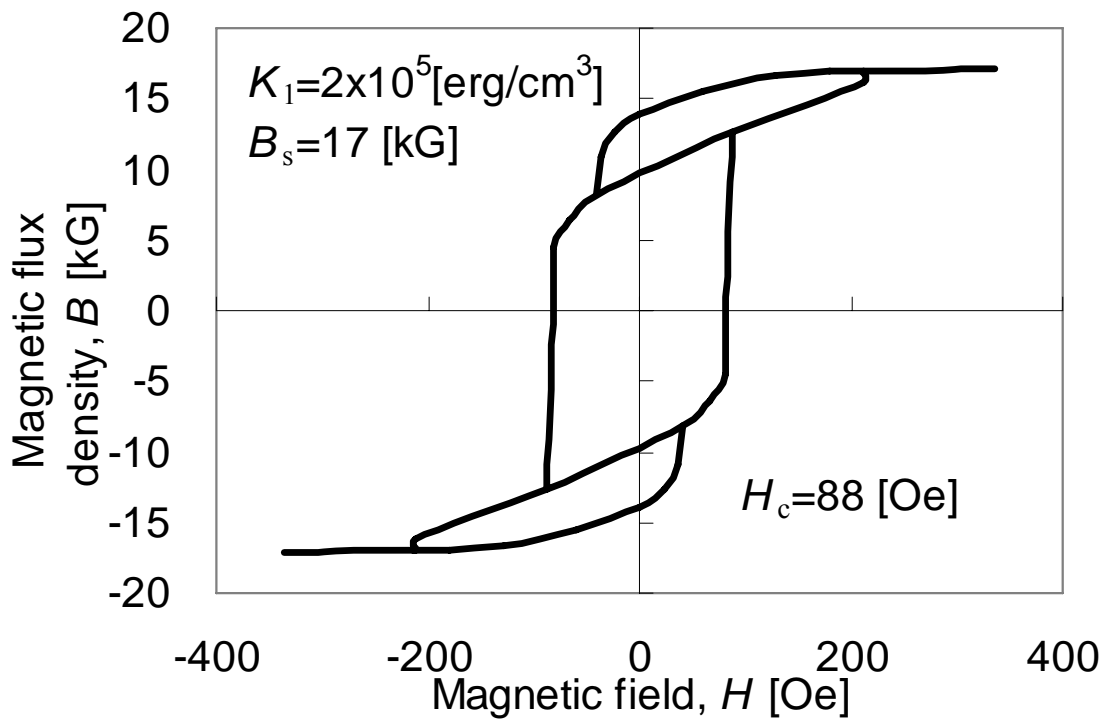


図 2.3.3-2 (110)配向膜の面内磁化回転による B - H ループの計算結果[B4]

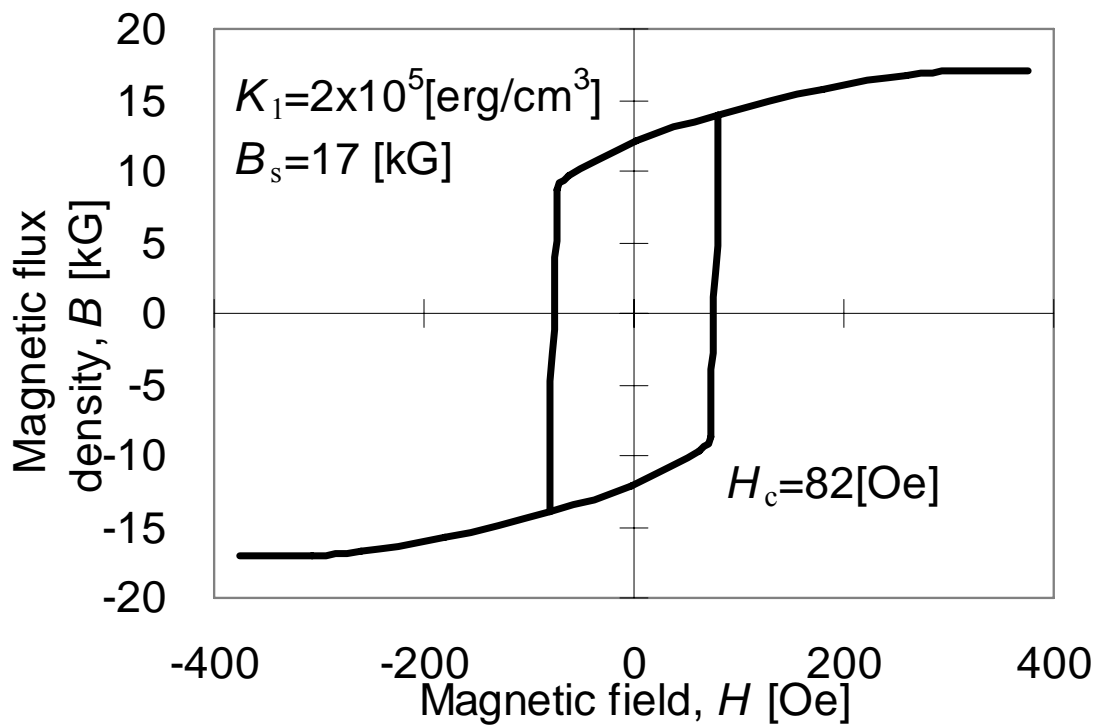


図 2.3.3-3 (100)配向膜の面内磁化回転による B - H ループの計算結果[B4]

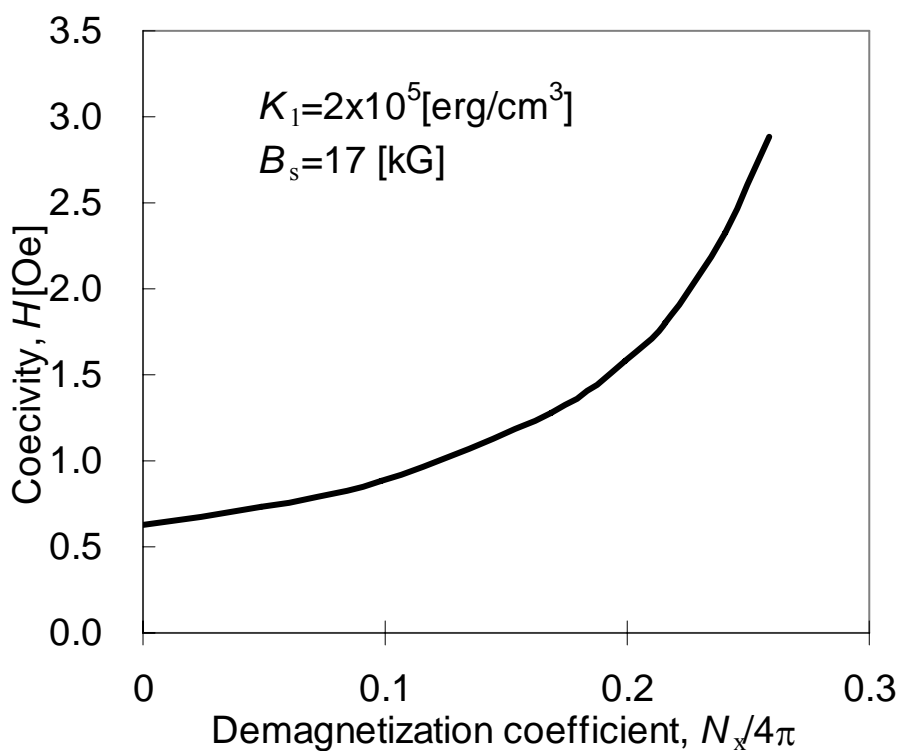


図 2.3.3-4 (111)配向膜の保磁力 H_c の膜厚(面内方向の反磁界係数)依存性[B4]

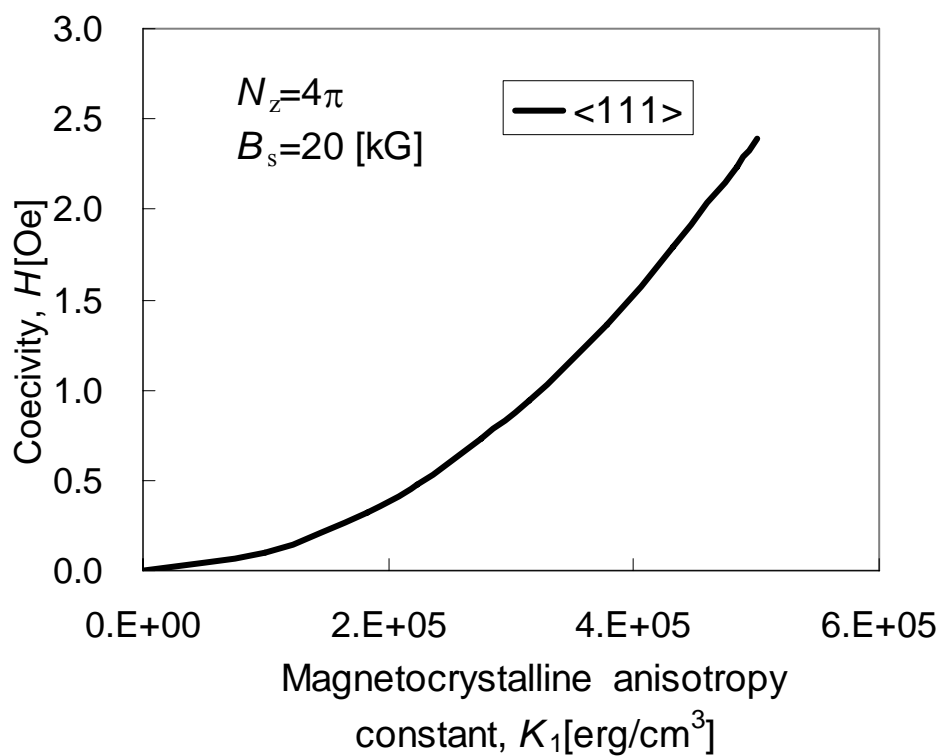


図 2.3.3-5 (111)配向膜の保磁力 H_c の結晶磁気異方性定数 K_1 依存性[B4]

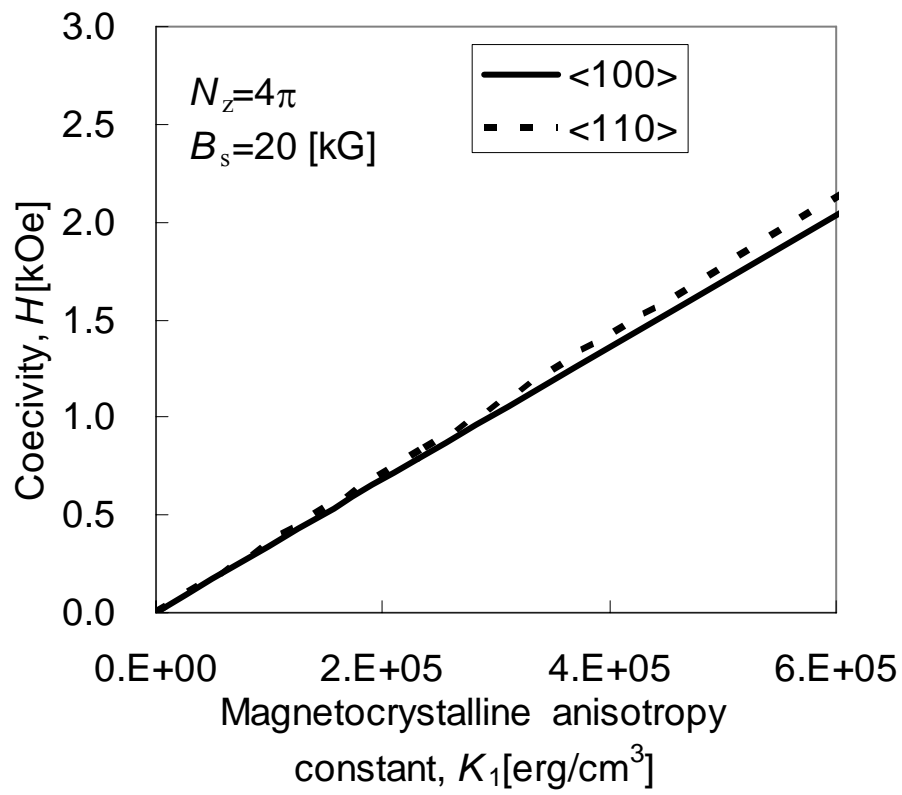


図 2.3.3-5 (100)配向膜と(110)配向膜の保磁力 H_c の結晶磁気異方性定数 K_1 依存性[B4]

§ 2.3.4 まとめ

本節では、磁歪がゼロとなる、立方晶薄膜に対して、保磁力に対する、配向、膜厚、及び結晶磁気異方性の影響について、計算によって求めた。主に想定した組成は純鉄に近い組成であり、例えば 12at%Si-Fe である。その結果、(111)配向膜では、保磁力が 0.6 Oe 程度に低下することが期待できる結果となった。Hosono 等は、実際に、スパッタ法により、12at%Si-Fe(6.9wt%Si-Fe)の各種配向膜を作製し、(111)配向膜で 0.5 Oe の保磁力が得られたと報告[B6]している。

ここで示した計算は高次の項、即ち K_2 以上の異方性定数の項を無視したものである。従って、もし、モーメントが面内でのみ(図 2.3.2-1 で $\theta=90$ 度一定で)回転すると仮定すると、(111)配向膜では、異方性エネルギーの方向依存性はなく、保磁力はゼロにならなくてはならない。しかし、ここで示したように、十分に小さいとはいえ、計算上も有限な保磁力が存在している。これは、モーメントの安定方向が面内ではなく、わずかではあるが、膜厚方向に傾いていることに対応した結果である。この傾き量は、形状磁気異方性エネルギーと結晶磁気異方性エネルギーのバランスで決定されるものである。従って、(111)配向膜によって軟磁性を得る場合は、局所的な形状も重要であり十分吟味される必要がある。

ここでは、各配向膜の比較のため、全ての方向の磁歪がほぼゼロになる 12at%Si-Fe を想定した計算を行ったが、(111)配向膜ではその磁歪 λ は

$$\lambda = (\lambda_{100} + 2\lambda_{111})/3 \quad (2-29)$$

となる[B7]。この値は、例えば、 ~ 1 at%Si-Fe のような極めて純鉄に近い高 B_s な組成域においてもゼロになること知られている[B8]。この場合、形状磁気異方性エネルギーは、高 B_s に対応して、モーメントを面内に封じ込める方向で低くなるため、さらに軟磁性が得られやすくなることが期待できる。

第4節 窒素系鉄基微結晶軟磁性薄膜

§ 2.4.1 はじめに

前節では、配向制御によって結晶磁気異方性の保磁力に対する影響を小さくすることで、軟磁性を得る試みについての理論的検討を行ったが、本節および次節では、結晶の微細化によって結晶磁気異方性の保磁力に対する影響を小さくすることで、軟磁性を得る実験的検討を行う。アモルファス状態とは、各原子の近傍には、一定の秩序が存在するが、数十原子はなれたところでは、その秩序の周期性が保たれていない状態である。強磁性原子であれば、交換結合による強磁性状態は維持されるが、全体として結晶的な異方性はなく、平均的に等方化されているためモーメントの向きの変化に伴う結晶磁気異方性エネルギーの増減は発生しない。このことから軟磁性が比較的容易に得られる。結晶材料でも、沢山の結晶粒をランダムな向きにして集積し、全ての結晶粒の磁化の方向をそろえて、強い外部磁場を回転させることにより磁化回転を誘発すれば、局所的なエネルギーの増減は存在するが、全体としては、磁化回転に伴うエネルギーの総和に増減が発生しない状態は作製できる。しかし、この場合、外部からの磁界印加がない状態では、各粒子の磁化方向は全て同一な方向を向くよりも、それぞれの結晶の容易軸に向いたほうが、エネルギーの総和は、低くなることが予想される(図 2.4.1-1)。ここでもし、各結晶粒が十分に小さく、且つ、異なった結晶方位の隣接する結晶粒の間でも交換結合によって磁化方向が同一方向に向いたほうがエネルギーの低い状態(図 2.4.1-2)が実現すると、アモルファスと同様なメカニズムによる軟磁性出現が期待される。Herzer の見積り[B9]によれば、Fe 系素材の場合、結晶粒の直径が 100-200 Å 程度以下になれば、保磁力の著しい低減が期待できる。そこで、

- ① Fe を主成分とする磁性膜をスパッタ法で成膜することによって、アモルファス状態の膜を得る。
- ② このアモルファス膜を熱処理によって、微結晶析出状態を作製し、微結晶軟磁性薄膜を得る。

ことを検討した。この節では、Fe-Zr, Fe-Hf, Fe-Ta, Fe-Nb などの二元合金ターゲットを用いて、成膜中に窒素ガスを用い、Fe-X-N 系材料で作製した結果[B11], [B12]を、次節では、硼素を用いて Fe-Zr-B 系材料で作製した結果[B13]を報告する。

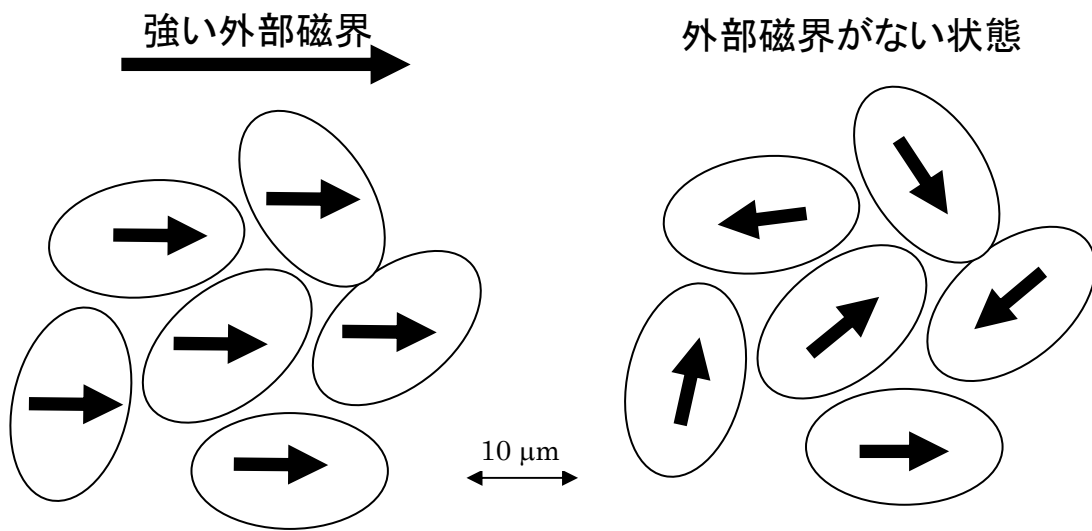


図 2.4.1-1 結晶粒が比較的大きい時の模式図

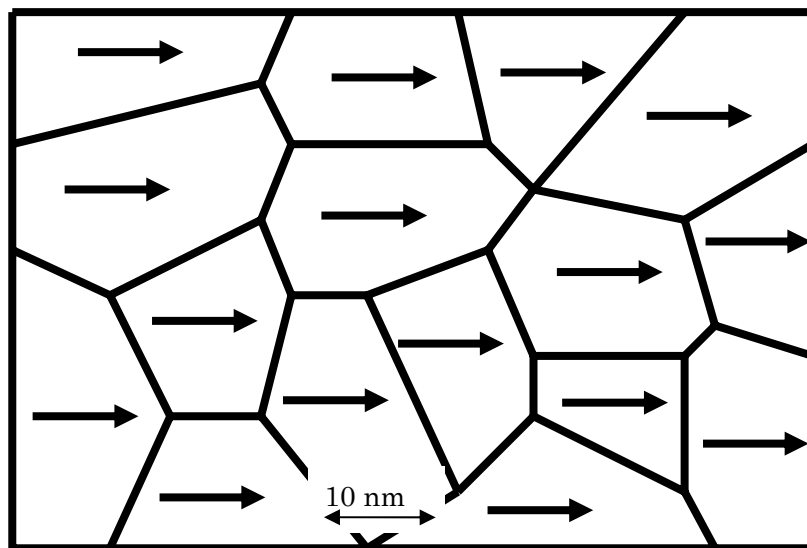


図 2.4.1-2 結晶粒が小さい時の模式図

§ 2.4.2 Fe-(Zr, Hf, Ta, Nb)-N 系材料の軟磁気特性

前項(§ 2.4.1)で述べた機構による軟磁性実現を目的に、非晶質形成能が高い元素で、また、窒素との親和力も高い Zr, Hf, Nb, Ta を Fe に添加した合金ターゲットを用いて、窒素を含むスパッタガス中でアモルファス状態の膜を成膜し、その後熱処理によって微結晶を析出させることを試みた。

(1) サンプル作製方法

$\text{Fe}_{100-x}\text{X}_x$ の組成で、直径 4 インチの合金ターゲットを作製し、スパッタ中の窒素分圧

$$P_{\text{N}_2} = \frac{\text{N}_2}{\text{Ar} + \text{N}_2} \times 100\% \quad (2-30)$$

がそれぞれ 2.0~15 mol% になるような窒素含有アルゴンガス雰囲気を用いて、全ガス圧 4.5 mTorr, 投入電力 200 W で、高周波スパッタ法により成膜した。透磁率測定用サンプルは非磁性フェライト基板を用いて膜厚~5 μm とし、その他のサンプルには単結晶サファイヤ基板を用いて膜厚~1 μm とした。得られた膜は減圧(10 Torr)窒素雰囲気中で磁界中(1.1 kOe)熱処理を施した。

(2) 評価方法

B - H ループ及び、保磁力 H_c は、50 Hz の B - H ループトレーサーで ± 25 Oe の印加磁界で測定した。飽和磁束密度 B_s は VSM で、透磁率は 8 の次コイルを用いて測定し、磁歪は第 6 節で説明する方法を用いて測定した。膜の電気抵抗は四端子法で、熱処理に伴う膜の構造変化は、X 線(Cu-K α)回折によって調べた。また、ビッカース硬度計を用いて膜の硬度を測定した。Fe 及び、Zr, Hf, Ta, Nb の組成定量は ICP 発光分光分析で、窒素含有量はインドフェノール吸光光度法によって求めた。

(3) 組成と軟磁性の関係

図 2.4.2-1, 図 2.4.2-2, 図 2.4.2-3, 図 2.4.2-4 それぞれに、Fe-Zr-N, Fe-Hf-N, Fe-Ta-N,

Fe-Nb-N 各 3 成分組成と磁気特性の関係を示している。ここで示す保磁力は±25 Oe の磁界で測定した容易軸方向の保磁力である。Fe-Nb-N 以外の系においては、 $H_c < 1$ の領域が存在しており、特に優れた軟磁性を示す組成域があることが分かる。Fe-Nb-N においても、 $H_c < 2$ の領域は存在し、比較的良好な軟磁性領域がある。Fe-Zr-N 及び Fe-Hf-N の系では、N と Zr もしくは、N と Hf の比が、2:1 から 1:1 の間で磁歪は 10^{-6} オーダーで正から負に反転する組成域があり、この磁歪ゼロ近傍の領域で保磁力 H_c も 1 Oe 以下を実現し、且つ飽和磁束密度が 16 kG を達成していることが分かる。Fe-Ta-N の系もほぼ同様な傾向があるが、保磁力が 1 Oe 以下の領域は若干小さい。

(4) 透磁率の周波数特性

図 2.4.2-5 に、それぞれの軟磁性中心組成の膜の透磁率の周波数依存性を示す。いずれの膜も低周波領域では 1000 を越え、良好な軟磁性を示した。特に、Zr 系 ($\text{Fe}_{80.5}\text{Zr}_{8.1}\text{N}_{11.4}$) 及び、Hf 系 ($\text{Fe}_{82.8}\text{Hf}_{7.7}\text{N}_{9.7}$) は、低周波から高周波まで高い透磁率を示した。一方、Ta 系 ($\text{Fe}_{69.8}\text{Ta}_{11.5}\text{N}_{18.7}$) では、高周波域で急激に透磁率の低下が確認され、また、Nb 系 ($\text{Fe}_{70.5}\text{Nb}_{6.2}\text{N}_{23.3}$) の場合、これらの中での比較では透磁率は若干低く、低周波域であっても 1000 を少し超える程度であった。

(5) 熱処理による組成と磁気特性の変化

熱処理(550 °C, 4 時間)に伴う N 含有量変化と飽和磁束密度の変化を調べた。図 2.4.2-6 に Fe-Zr-N と Fe-Hf-N に関する結果を、また図 2.4.2-7 に Fe-Ta-N と Fe-Nb-N に関する結果を示す。ここで、横軸は Fe と X(Zr, Hf, Ta, 若しくは Nb) 元素の総和に対する X の組成(x)比率で、左の縦軸が、N と X 元素の比(n/x)、右の縦軸が飽和磁束密度(B_s) である。この実験では、成膜時の窒素分圧は全て 10 %とした。また、実線が熱処理前、破線が熱処理後を示している。図から明らかなように、Zr、及び Hf 系では、熱処理によって N 量が減少し、組成比 n/x がほぼ一定の値になり、また、飽和磁束密度 B_s が増加していることが分かる。増加後(熱処理後)の飽和磁束密度の $x=0$ への外挿値は、ほぼ α -Fe の飽和磁束密度になっている。一方 Ta 系や Nb 系では、軟磁性が得られなかった低 Ta 量の場合に n/x の低下が確認されたが、それ以外の組成では、熱処理に伴う N 量の大きな変化は無かった。

図 2.4.2-8 には、Fe-Zr-N 系薄膜に関して、磁化の温度依存性について VSM により

測定した結果を示す。縦軸は、成膜直後熱処理前の室温での磁化量を 1 としたときの相対値で示している。5 枚のサンプル(A, B, C, D, E)を、全て同一条件、具体的には、ターゲット組成 Fe₉₀Zr₁₀ (at%) で、5.0 mol%の窒素を含有する窒素含有アルゴンガス雰囲気中でガス圧力 4.5 mTorr, 投入電力 200 W の条件で約 0.6 μm の厚さで成膜した。測定は、室温から開始して約 3 °C/min で昇温しながら行ない、Sample A は 340 °C で 120 分間, Sample B は 450 °C で 60 分間, Sample C は 500 °C で 60 分間, Sample D は 520 °C で 180 分間, Sample E は 550 °C で 120 分間保持した。それぞれの温度での保持時間は、磁化の変化が安定することを確認して決定した。その後、-3 °C/min で室温まで降温しながら測定した。Sample B と Sample C のラインは殆ど重なっており、グラフ上区別できない。図 2.4.2-8 より、熱処理前の Fe-Zr-N 非晶質薄膜 (as-depo) のキュリー温度は、約 250 °C であり、少なくとも 340 °C 以上の温度で保持すると磁化の値が上昇し、キュリー温度が上昇していくことがわかる。550 °C で 120 分間保持した場合、キュリー温度は 700 °C 以上と推定され、熱処理によって α-Fe のキュリー温度 (770 °C) に近づいていくことがわかる。室温での磁化は、いずれの場合も熱処理前の非晶質薄膜より高いが、520~550 °C 保持でほぼ飽和し、熱処理前と比較して 1.12~1.14 倍となっている。

(6) 結晶性と軟磁性

それぞれの合金系で、軟磁性領域のほぼ中心組成の膜の熱処理後の X 線回折パターンを、図 2.4.2-9 に示す。熱処理前はいずれの膜も明確なピークの無い非晶質構造を示すハローパターンであったが、熱処理後は、それぞれ Zr, Hf, Ta, 及び Nb の窒化物と α-Fe(110)のブロードなピークが現れており、α-Fe の微結晶が析出していることが分かる。また、図には示していないが広角側の α-Fe(200)や α-Fe(211)に対応するピークは殆ど観察されなかったことから、α-Fe の微結晶は(110)面配向していると考えられる。軟磁性が得られた組成域では、この α-Fe の微結晶のサイズは、半値幅や電子顕微鏡観察の結果から数十 Å 程度と推定され(詳細後述)、Herzer の見積り [B9]による「保磁力の著しい低減を期待できるサイズ」を実現している。Zr 系や Hf 系では軟磁性が得られる組成範囲が広く、広範な組成の膜で類似な回折パターンとなるが、Nb 系の場合は、組成のズレに伴い軟磁性の劣化と同時に X 線回折パターンにも変化が見られる。Nb 系で幾つかの組成での X 線回折パターンを図 2.4.2-10 に示す。ここで示すように Nb 系ではわずかな組成の変化でも、Nb と Fe の化合物が析出しやすく、このことが、軟磁性組成範囲を狭めている原因と推察される。微結晶での軟磁性出現は、微細な α-Fe が面内でランダ

ムに配位し、これらの微細な結晶が交換結合で同一方向に磁化を向かせることでエネルギーの磁化方向依存性をなくしていると考えられる。従って、この機構を実現するためには、Fe の化合物の析出は好ましくない。このことは、長谷川らによって Fe-Ta-C 膜で報告[B14]されている条件と類似している。

図 2.4.2-11 には、Fe-Zr-N、及び窒素を含まない Fe-Zr に関する熱処理前後の X 線回折パターンを示す。図中サンプル A と B の組成の違いは熱処理に伴う N 量変化のためであり、成膜条件は同一のものである。即ちサンプル A と B はともに Fe₈₅Zr₁₅ のスパッタターゲットを用いて窒素分圧 10 % (Ar 90 %) のスパッタガス中で成膜したものであり、サンプル C と D は、やはり Fe₈₅Zr₁₅ のスパッタターゲットを用いて窒素を含まない Ar ガス中で成膜したものである。この図から明らかのように、窒素を含まない場合、550 °C 程度の熱処理では結晶化は起きていない。Fe_{85.5}Zr_{14.5} アモルファスの結晶化温度はもっと高いと推定される。一方窒素を含むことにより、結果として 550 °C 以下で結晶化が進行した。これは、成膜時においては N の存在は、非晶質形成に寄与した可能性もあるが、熱処理に伴い、X 元素を奪う(窒化物を形成する)ことによって、Fe 中のアモルファス形成元素としての X 元素量を低下させ、その結果、膜中の組成揺らぎを生じさせ α-Fe 微結晶を生成させたと考えられる。このような結晶化過程では、熱処理温度以下で生成される窒化物が、ある温度で急速に形成される場合に、均質な微結晶析出が容易になると考えられる。Zr や Hf には組成比が 1:1 の ZrN や HfN のみが形成されているのに対して、Nb の場合 Nb₂N や Nb₄N₃ に対応ピークも観察されており、これが Fe-Nb-N 系で軟磁性組成域を狭くしている要因と考えられる。

(7) 結晶粒

図 2.4.2-12 には、Fe-Zr-N 系薄膜の軟磁性中心組成膜の、製膜直後(as-deposited)、350 °C 熱処理後及び 550 °C 熱処理後について、それらの TEM 観察結果を示している。製膜直後の段階では、構造は観察されず、均質な膜であったものが、350 °C 以上で熱処理することにより、微細な結晶粒が析出している様子が観察される。

図 2.4.2-11 に示す X 線回折ピークの半値幅 B から

$$D = \frac{K\lambda}{B \cos \theta}$$

の関係を用いて結晶粒径 D を見積もった[B10]. ここで, B は測定された半値幅 B_{obs} から装置の持つ広がり b を引いた値($B=B_{\text{obs}}-b$)で, 本装置では b は 0.1~0.2 程度であるが, $B_{\text{obs}} \gg b$ のため, 結果にはあまり影響しない. K は定数で, 概ね 1 であるが, Scherrer によれば, 回折ピークをガウシアンと見なす場合

$$K = 2\sqrt{\frac{\log 2}{\pi}} \approx 0.94$$

となる. 即ち, 550 °C で熱処理した後の Fe-Zr-N 系薄膜における α -Fe 結晶粒の直径 D_{Fe} 及 ZrN 結晶粒の直径 D_{Zr} は, $K=0.94$, $\lambda=1.5045 \text{ \AA}$, $b=0.2$ として

$$D_{\text{Fe}} \approx 70 \text{ \AA}$$

$$D_{\text{Zr}} \approx 45 \text{ \AA}$$

と見積もられる.

(8) 膜硬度と電気抵抗

磁気ヘッド用コア部材として, 媒体と接触摺動して利用するためには, 膜硬度は重要なパラメータとなる. また, 透磁率の高周波特性は渦電流損失も大きく影響するため, 軟磁性膜では電気抵抗も重要なパラメータとなる. Fe-Zr-N 系, Fe-Hf-N 系, Fe-Ta-N 系の軟磁性が得られた膜について, ビッカース硬度及び電気抵抗を調べた. 測定結果を表 2.4.2-1 に示す. いずれの膜の硬度も 1000 以上であり, 従来から高硬度と言われているフェライトやセンダスト(いずれも 600 程度)よりも高い. これは, Zr などの窒化物の析出が寄与しているものと推察される. 電気抵抗は, 酸化物であるフェライトほどではないが, パーマロイ($\sim 20 \mu \Omega \text{ cm}$)と比較して十分に高い値を有している.

表 2.4.2-1 ビッカース硬度と電気抵抗

FeXN X=Zr, Hf, Ta	組成			ビッカース硬度 Hv	電気抵抗率 [$\mu\Omega\cdot\text{cm}$]
	Fe	X	N		
FeZrN	77.8	7.6	14.6	1010	77
FeHfN	82.6	7.7	9.7	1100	60
FeTaN	69.8	11.5	18.7	1220	88

(9) 結論

Fe-X-N(X=Zr, Hf, Ta, Nb)系薄膜を作製し熱処理に伴う磁気特性の変化を調べたところ、以下のことが明らかになった。

- ① 成膜時においては、いずれの組成系も非晶質的であり、また、軟磁性は得られていない。
- ② Fe-Zr-N 系では、成膜時のキュリー温度は α -Fe に比べて著しく低く、250℃程度であるが、熱処理によってキュリー温度は上昇し、 α -Fe のキュリー温度(770℃)近くになる。
- ③ いずれの組成系においても 550℃の熱処理によって良好な軟磁性組成域が存在するようになる。特に Fe-Zr-N 及び Fe-Hf-N 系では広範囲の組成域で軟磁性を示し、透磁率も広帯域で高い値を示す。
- ④ 軟磁性は非晶質から析出した微結晶によって得られていると考えられる。
- ⑤ Fe-Zr-N 及び Fe-Hf-N 系では、熱処理に伴い N 量が増加し、窒素元素の離脱が確認されるが、Fe-Ta-N 及び Fe-Nb-N 系では組成の変化はほとんどない。

次項(§ 2.4.3)において、Fe-Zr-N 系の”過剰な”窒素の磁気特性への影響について詳細に調査した結果を報告する。また、次節(第 5 節)においては、熱処理に伴う組成変化が発生しないと想定される Fe-Zr-B 系薄膜での軟磁性出現について調査した結果を報告する。

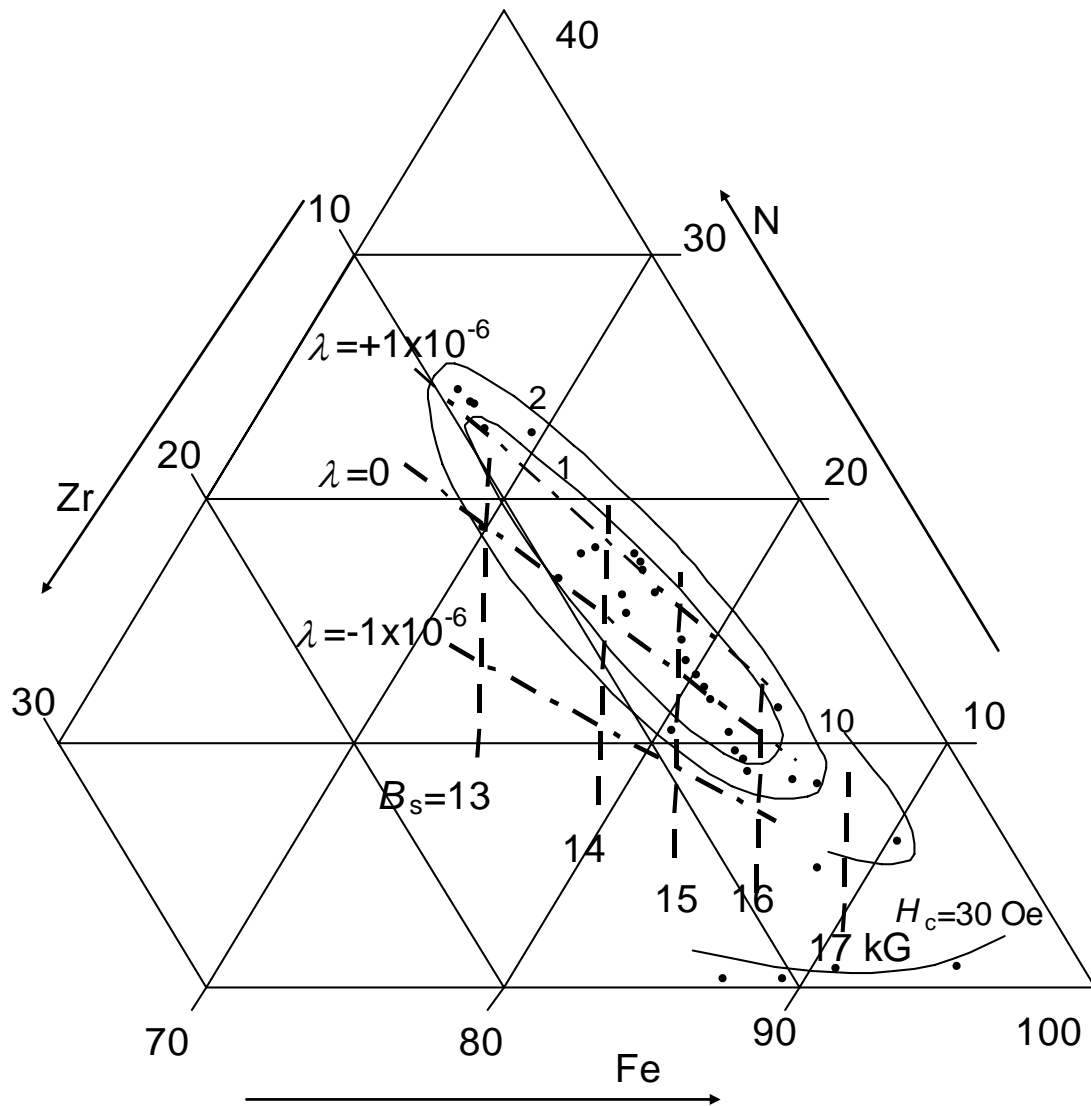


図 2.4.2-1 Fe-Zr-N 系薄膜における磁気特性(保磁力, 磁歪, 飽和磁束密度)と組成との関係(550 °C熱処理後)[B11]

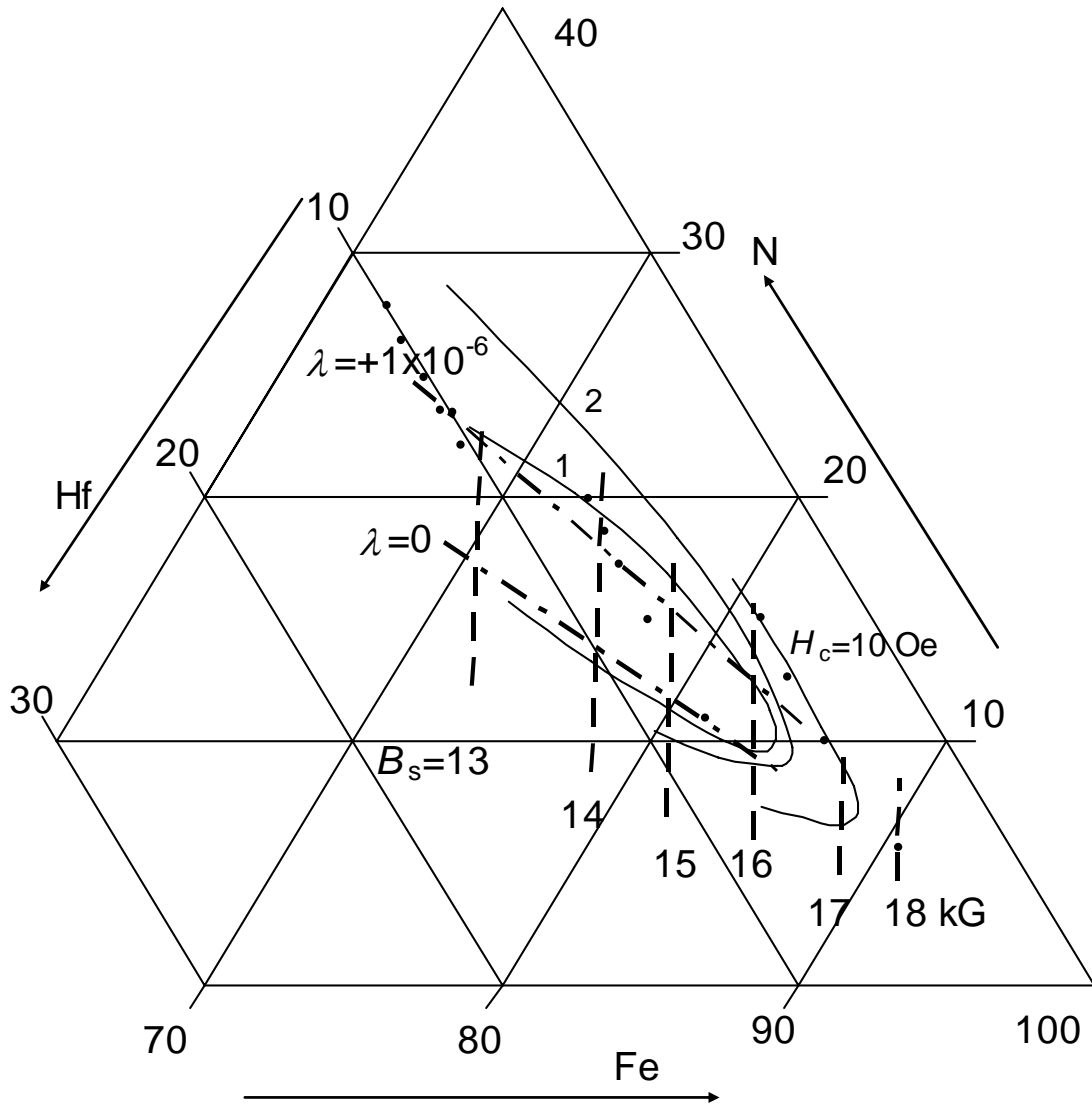


図 2.4.2-2 Fe-Hf-N 系薄膜における磁気特性(保磁力, 磁歪, 飽和磁束密度)と組成との関係(550 °C熱処理後)[B11]

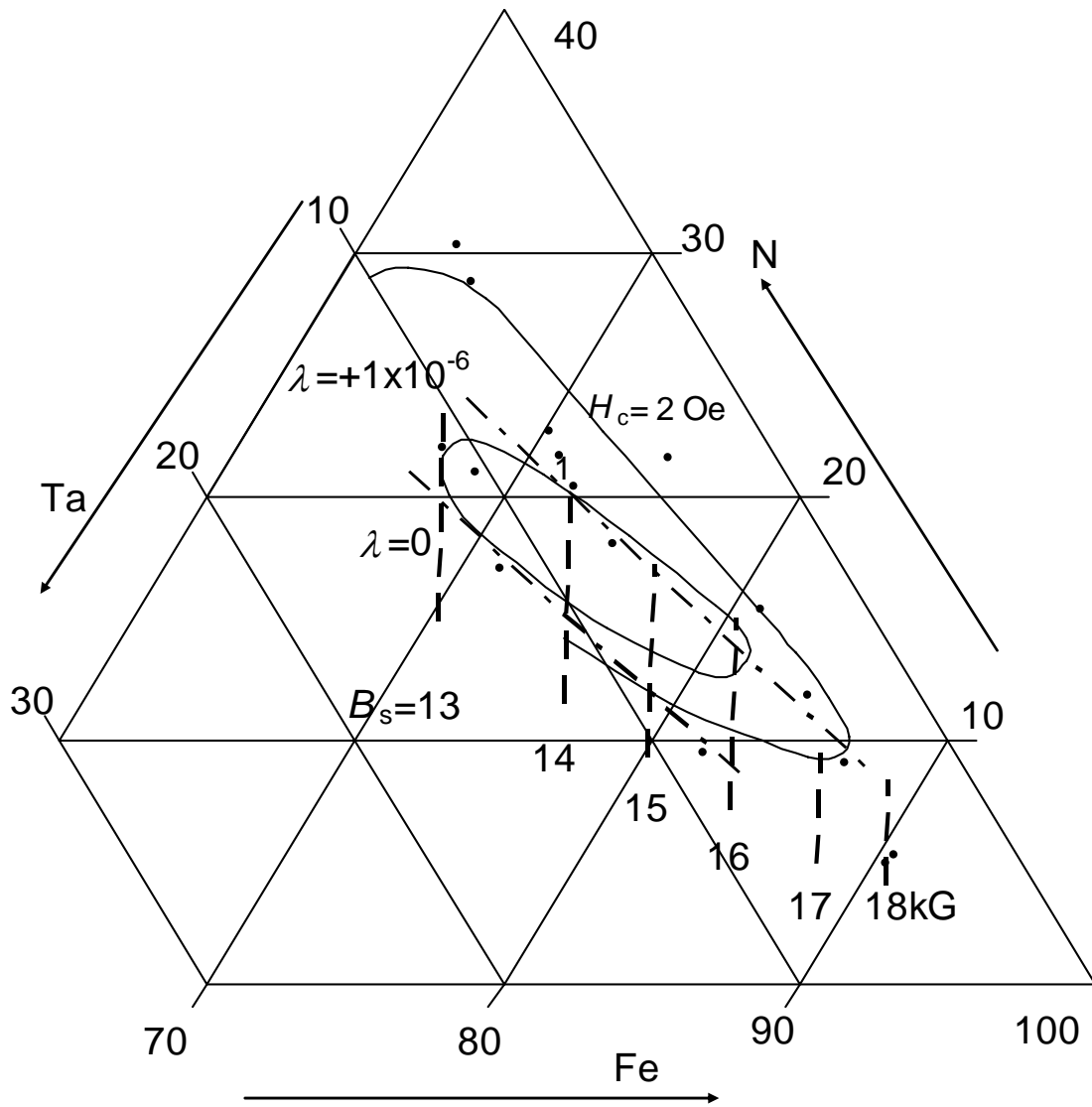


図 2.4.2-3 Fe-Ta-N 系薄膜における磁気特性(保磁力, 磁歪, 飽和磁束密度)と組成との関係(550 °C熱処理後)[B11]

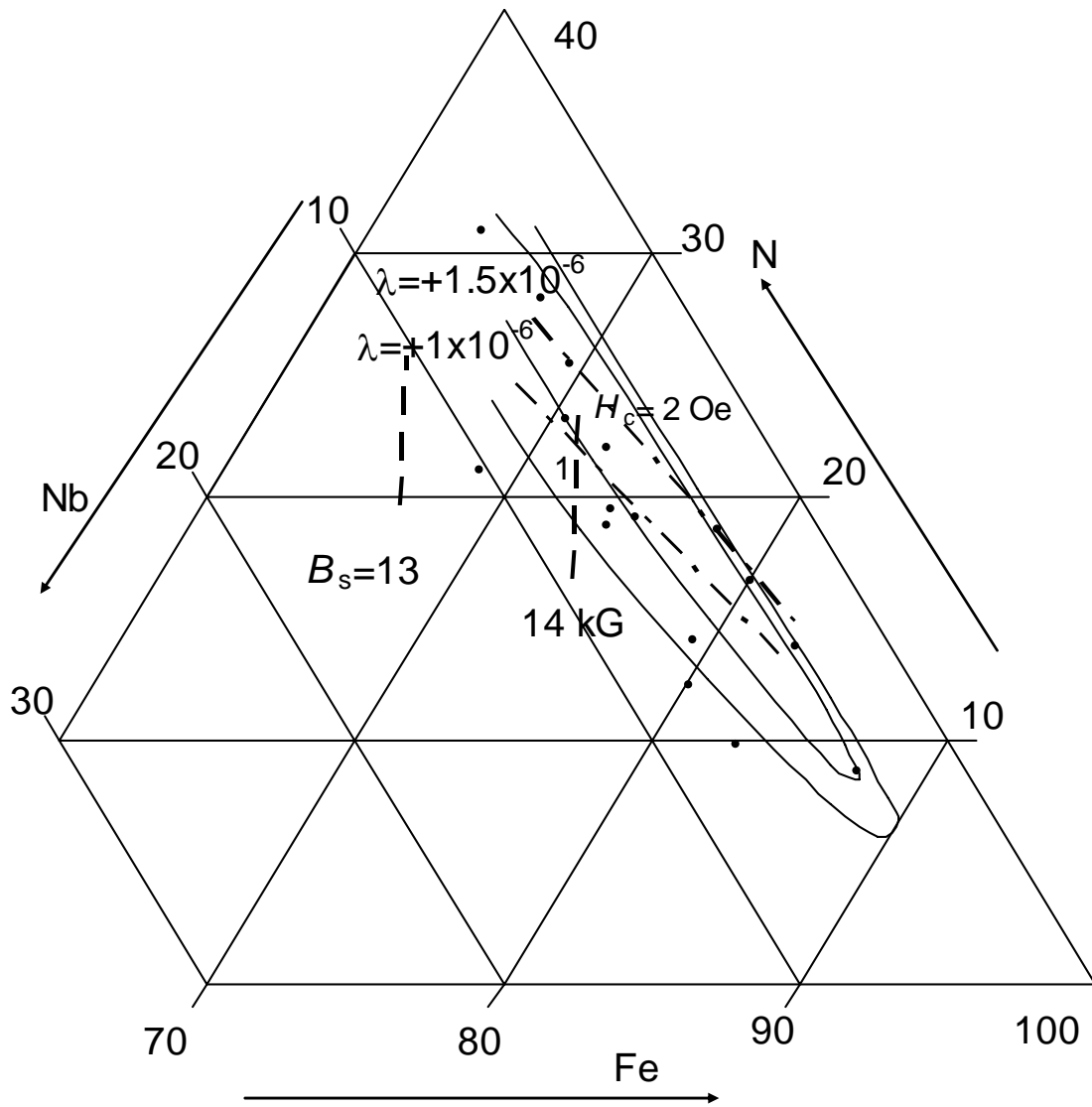


図 2.4.2-4 Fe-Nb-N 系薄膜における磁気特性(保磁力, 磁歪, 飽和磁束密度)と組成との関係(550 °C熱処理後)[B11]

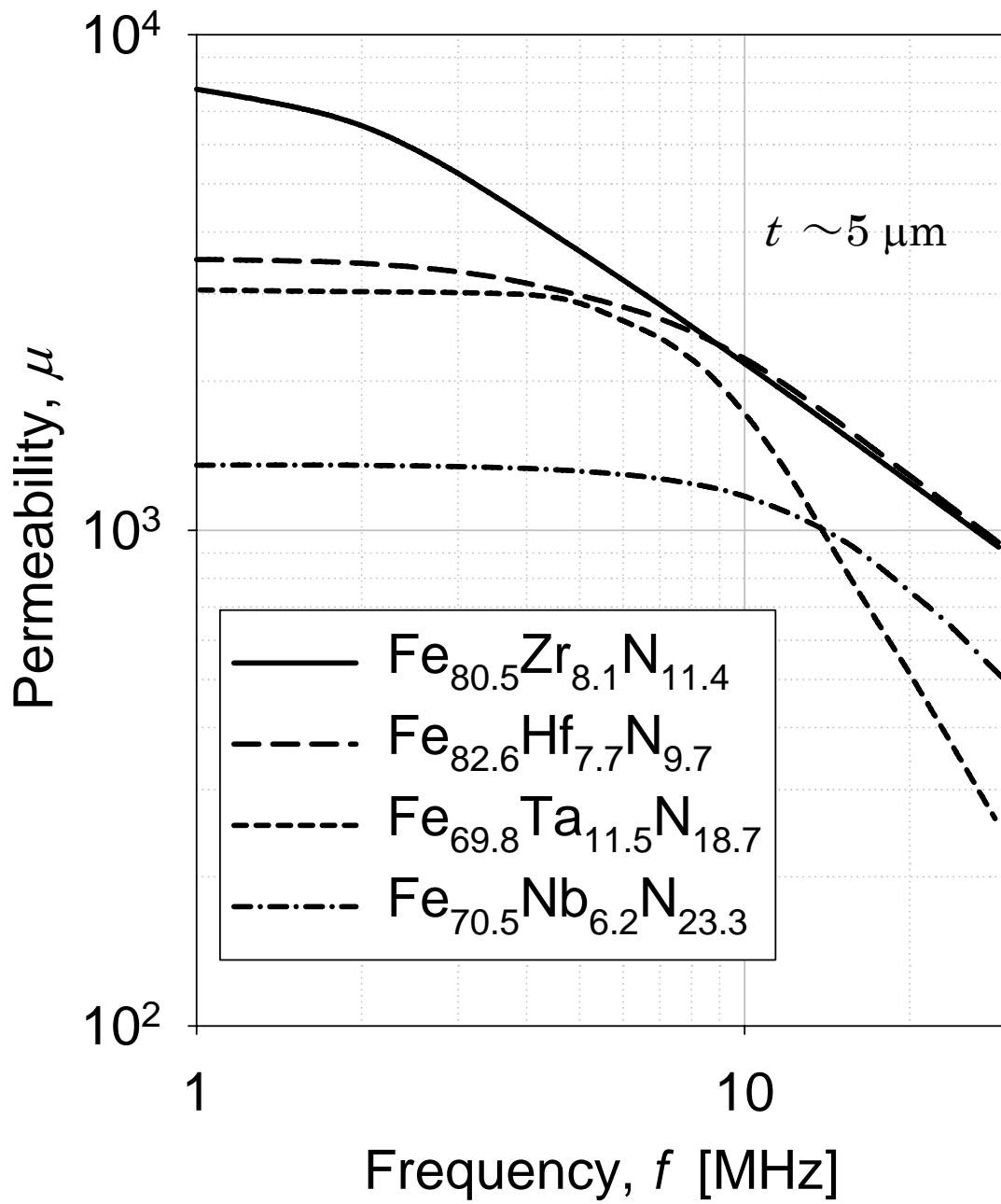


図 2.4.2-5 透磁率の周波数特性(膜厚 $t \sim 5 \mu\text{m}$) [B11]

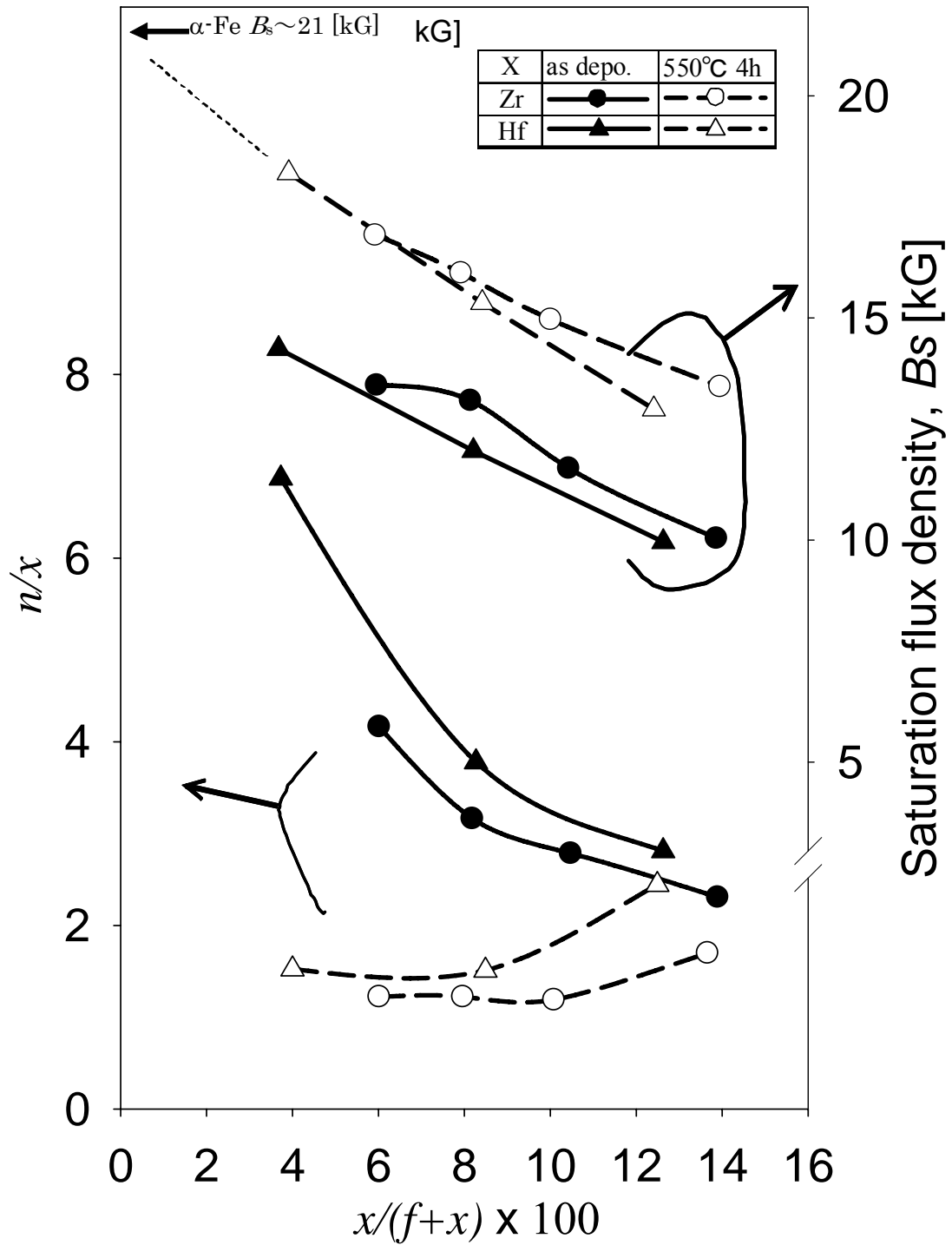


図 2.4.2-6 $\text{Fe}_f\text{Zr}_x\text{N}_n$ 及び $\text{Fe}_f\text{Hf}_x\text{N}_n$ における熱処理前後での窒素量(n/x)及び飽和磁束密度(B_s)の比較[B11]

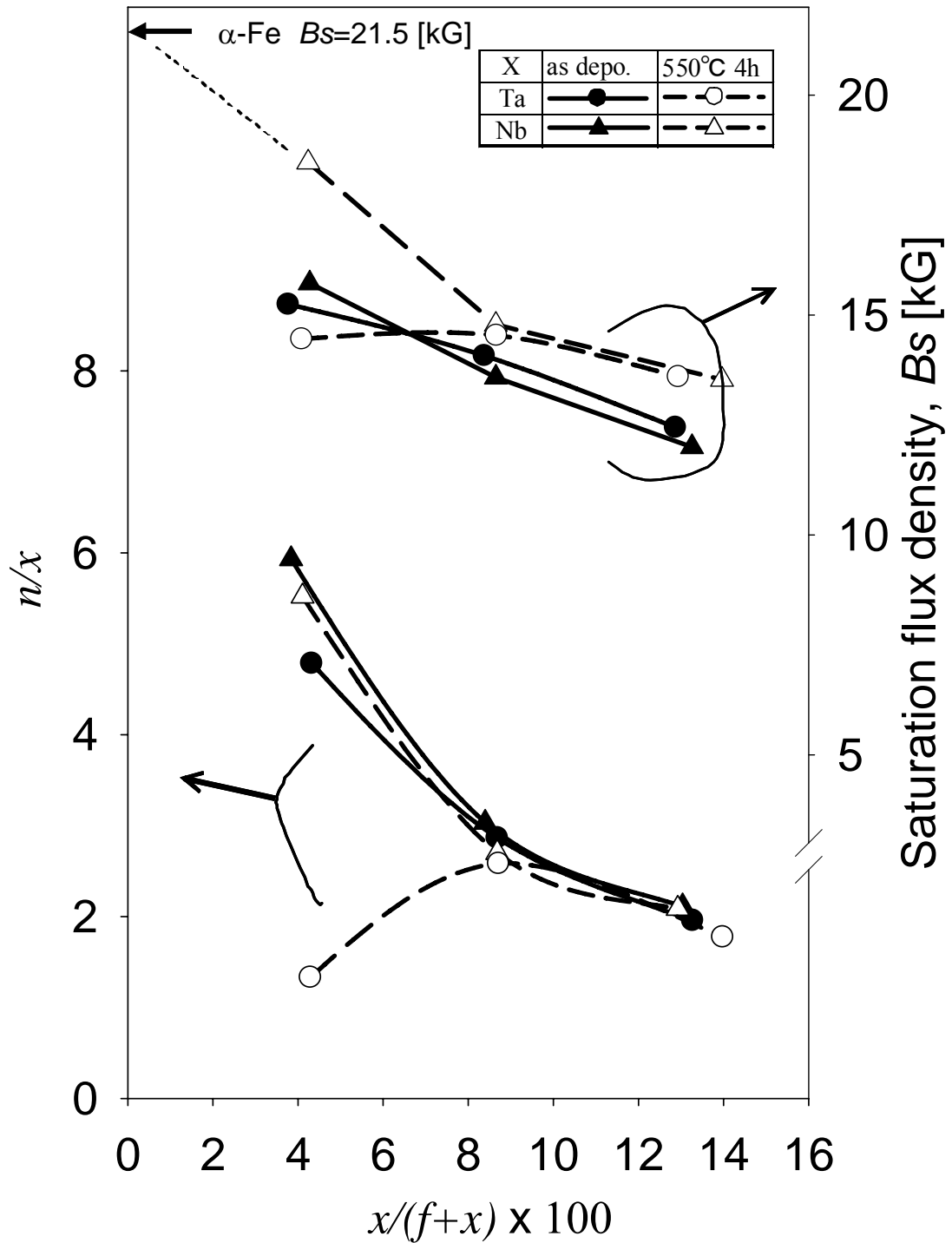


図 2.4.2-7 $\text{Fe}_f\text{Ta}_x\text{N}_n$ 及び $\text{Fe}_f\text{Nb}_x\text{N}_n$ における熱処理前後での窒素量(n/x)及び飽和磁束密度(B_s)の比較[B11]

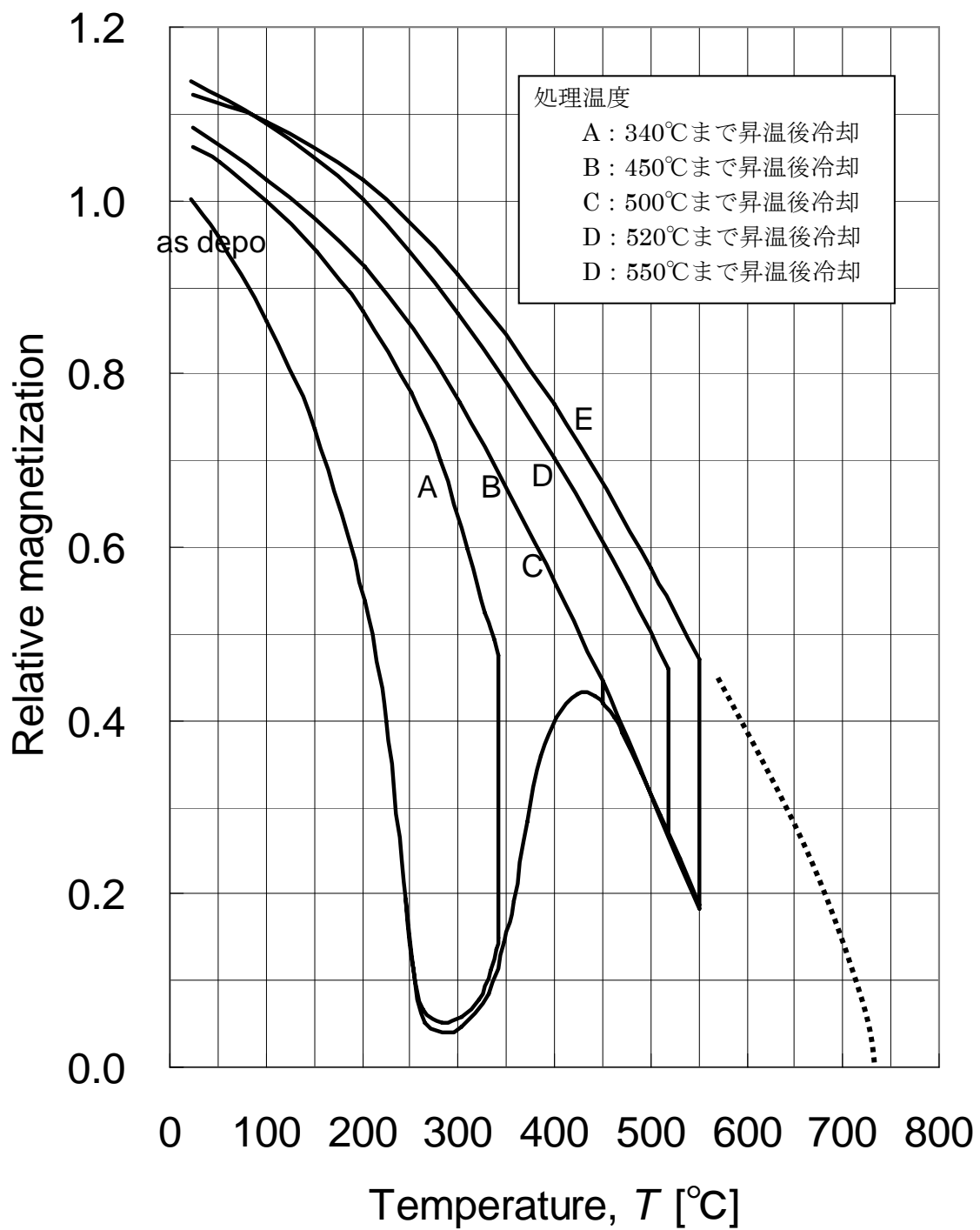


図 2.4.2-8 磁化の熱処理温度依存性

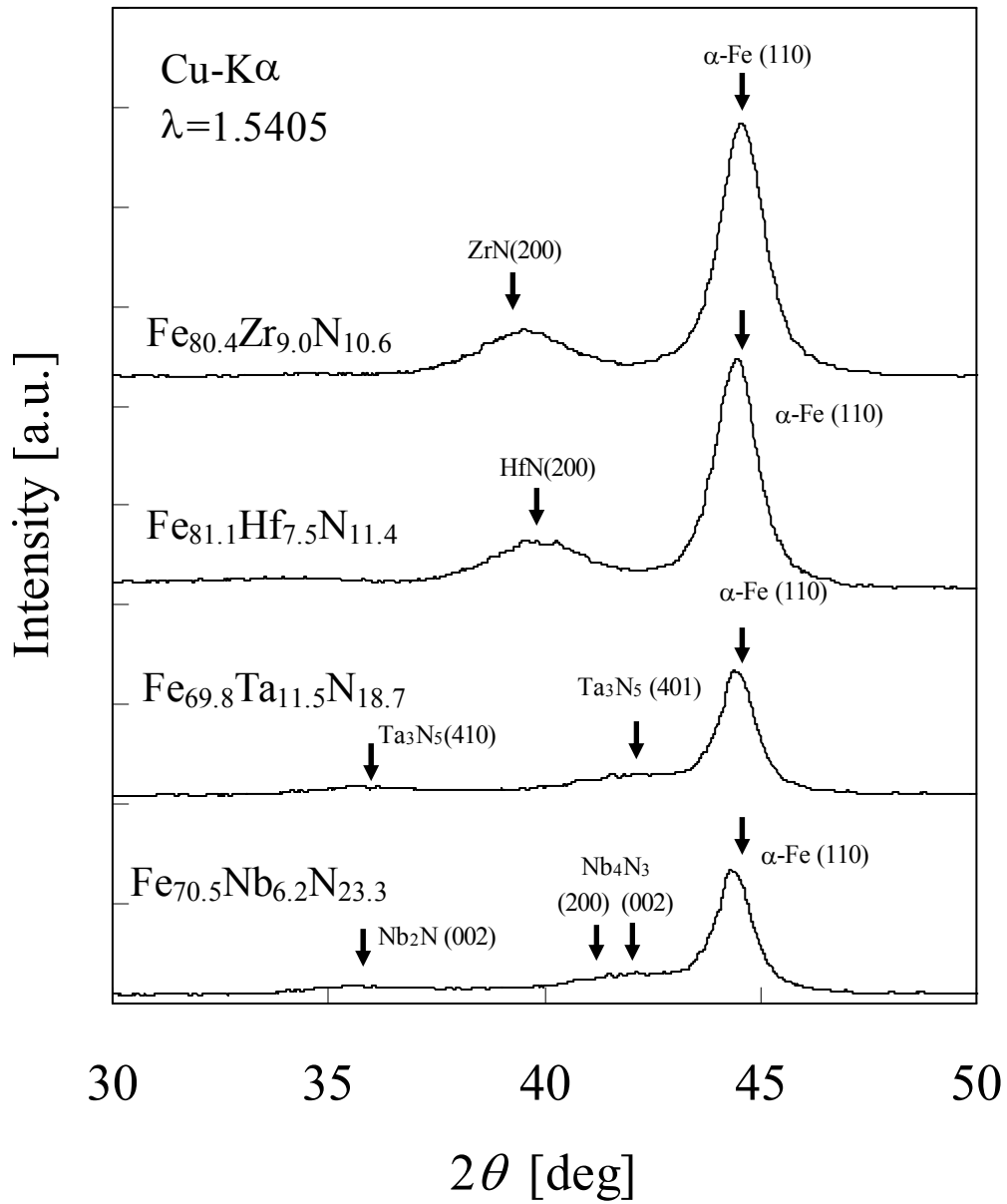


図 2.4.2-9 軟磁性中心組成付近の Fe-Zr-N, Fe-Hf-N, Fe-Ta-N, Fe-Nb-N 系薄膜の熱処理(550 °C)後の X 線回折測定結果[B11]

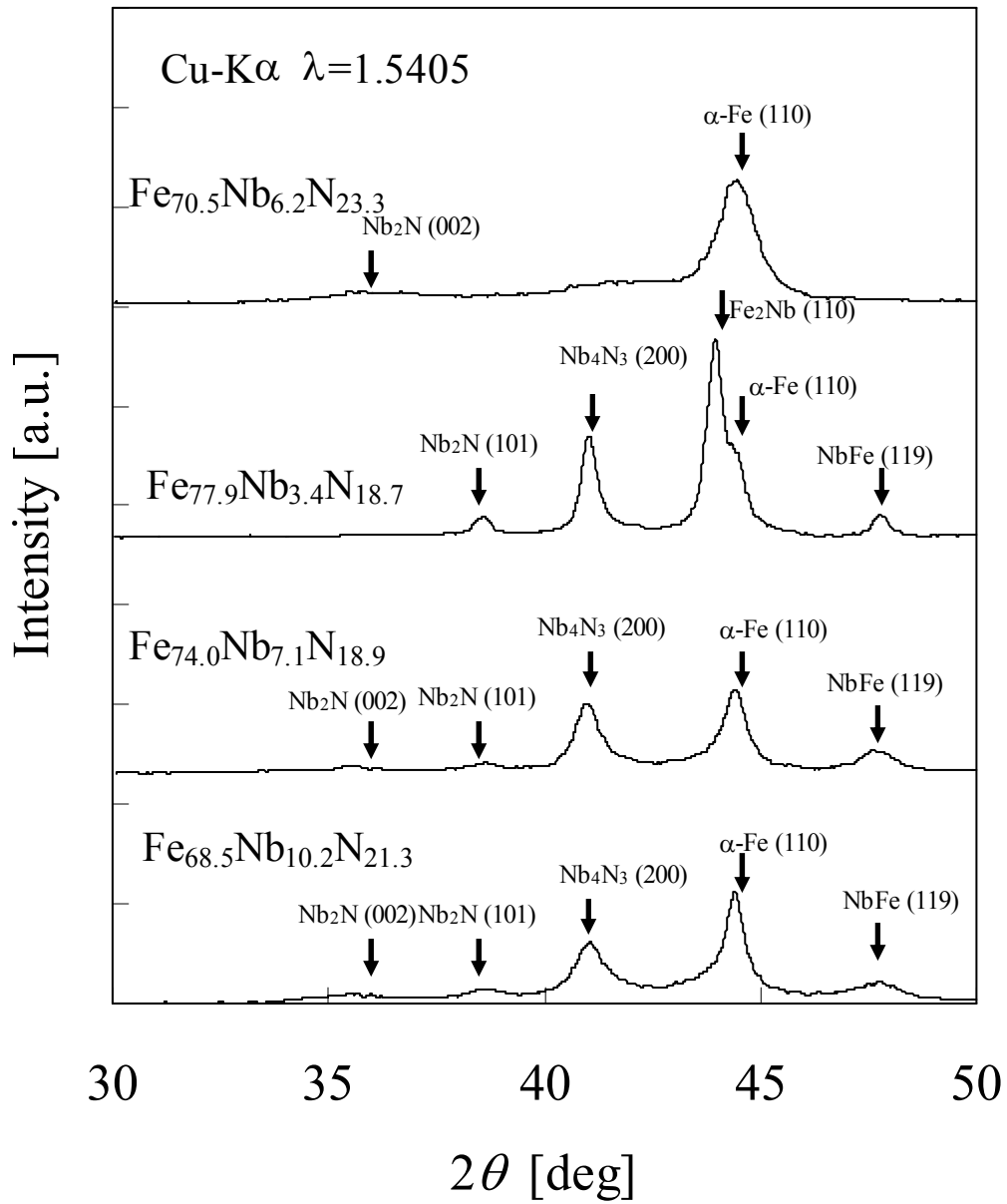


図 2.4.2-10 さまざまな組成の Fe-Nb-N 系薄膜における熱処理(550 °C)後の X 線回折測定結果[B11]

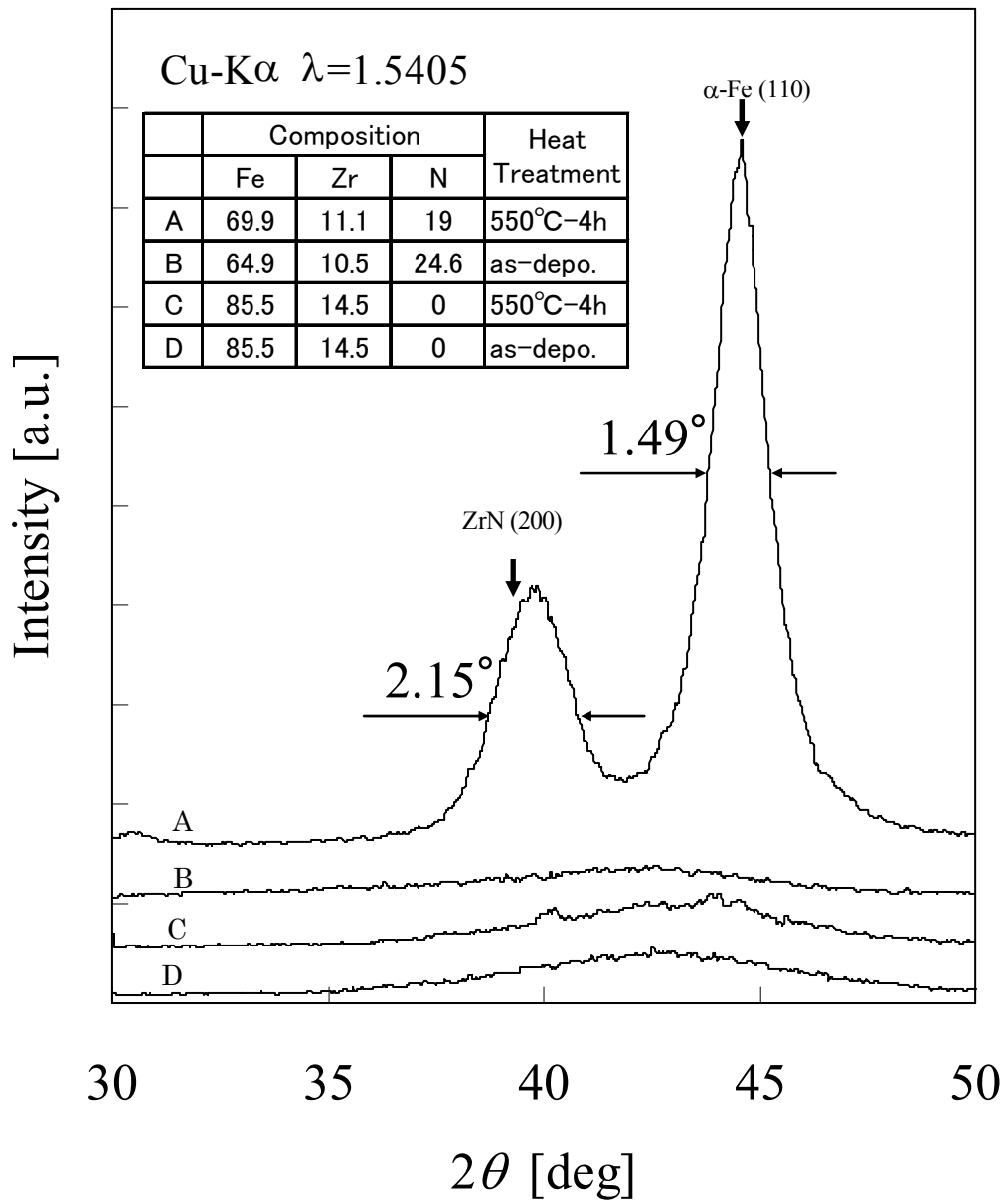


図 2.4.2-11 Fe-Zr-N と Fe-Zr 系薄膜の X 線回折の熱処理前後での比較[B11]

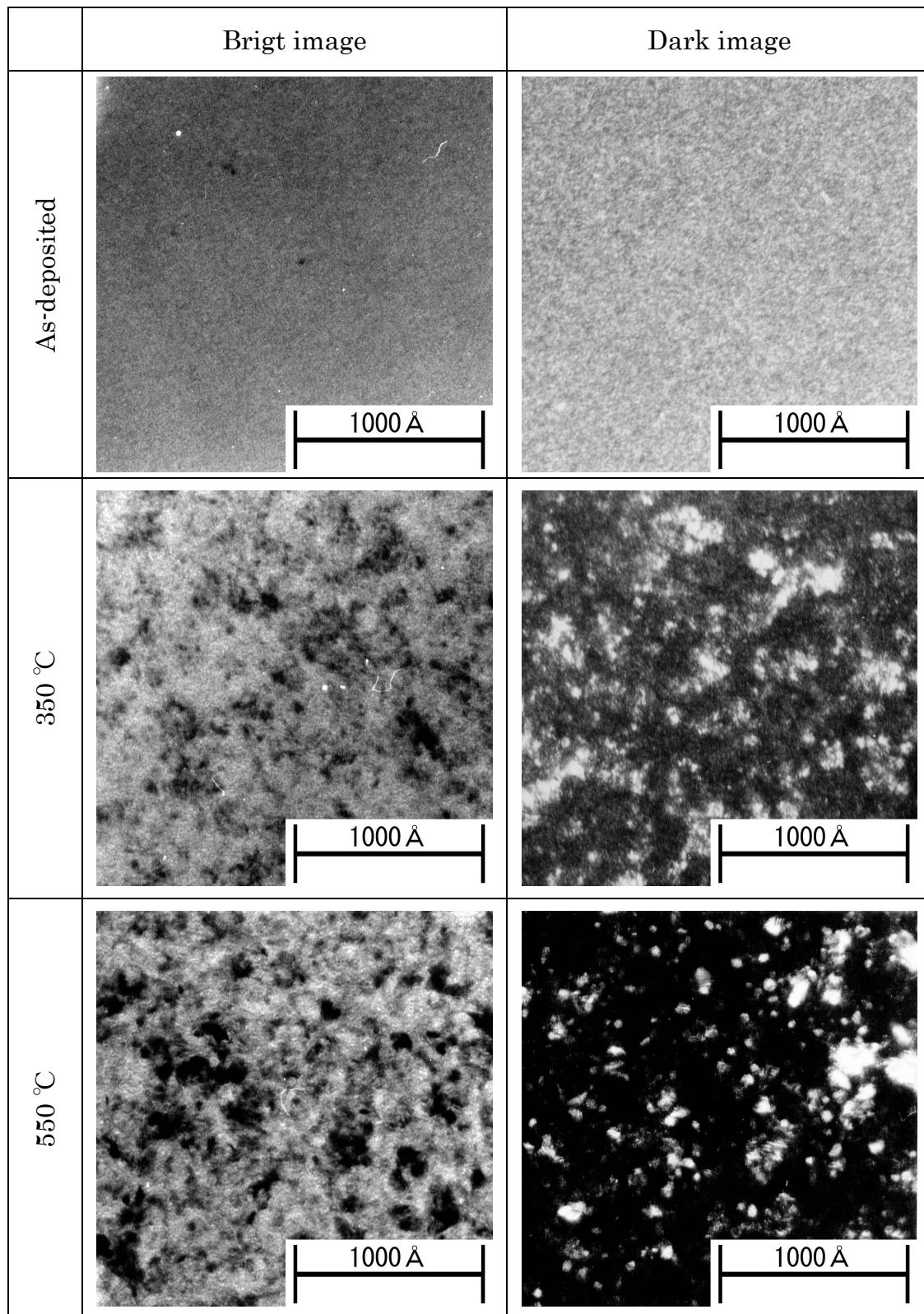


図 2.4.2-12 熱処理に伴う Fe-Zr-N 薄膜の微結晶粒析出(TEM 像)

§ 2.4.3 Fe-Zr-N 系薄膜の過剰窒素と軟磁気特性

前項で調べた結果によれば, Fe-X-N(X=Zr, Hf, Ta, Nb) は良好な軟磁性を示す組成域が存在する. 特に Fe-Zr-N 及び Fe-Hf-N は両者ともに広い組成範囲で良好な軟磁性を示す. しかし, Hf は Zr と比較して材料コストが高く, コストの観点も含めると, これらの中では Fe-Zr-N が最も有望な軟磁性薄膜と考えられる. 一方, Fe-Zr-N 系での軟磁性出現は, 熱処理による組成の変化(過剰な N の離脱)を伴っており, 熱処理後には, Zr:N の元素比は 1 に近い値になる. 本項では, Zr:N=1:1 を超える N 元素を”過剰な窒素”と定義し, この過剰な窒素が軟磁気特性に及ぼす影響について調査した結果を報告する[B12].

(1) 過剰窒素

組成 $\text{Fe}_x\text{Zr}_y\text{N}_z$ の薄膜において, 過剰窒素 E_N を

$$E_N = \frac{(z-y)}{x+(z-y)} \times 100 \quad (2-31)$$

と定義する. これは, Zr の窒化物が組成比 1:1 の ZrN のみであると想定し, 薄膜中に 1:1 の ZrN と, 純粋な α -Fe が互いに独立に存在した状態でゼロになるパラメータであり, α -Fe の格子の中に侵入型で溶けた N もしくは Fe の窒化物(Fe_4N など)の窒素元素の量を Fe との合計量に対する比として定義したものである. 即ち, E_N とは, $\text{Fe}_x\text{Zr}_y\text{N}_z$ を $\text{Fe}_x\text{N}_{(z-y)}$ と $(\text{ZrN})_y$ とに分けて考えた場合の $\text{Fe}_x\text{N}_{(z-y)}$ の窒素含有率である.

(2) 実験方法

ここでの実験は $\text{Fe}_{90}\text{Zr}_{10}$ スパッタターゲットを用いて, スパッタガスとして Ar の中に N_2 を含むガスを用いて全ガス圧を 4.5 mTorr とし, 高周波スパッタ法で行った. 窒素分圧は 0 から 15 mol%まで変化させたが, 成膜された膜の Zr と Fe の比($\text{Fe}_x\text{Zr}_y\text{N}_z$ における y/x)は概ね 0.092 であった. また, 熱処理による N の離脱を阻害するために, 一部のサンプルには, 磁性膜の上に 800 Å の SiO_2 を成膜している. この SiO_2 の成膜により, 熱処理による組成変化が発生しないことはインドフェノール吸光光度法により確認

した。

(3) 熱処理に伴う膜中過剰窒素量(E_N)の変化

表 2.4.3-1 に、成膜中の窒素分圧 6 % で作製した膜に対して、250 °C、350 °C、450 °C、500 °C、550 °C で熱処理したときのそれぞれのサンプルの組成の変化を示す。熱処理温度 250 °C では、組成の変化はないが、500 °C を超える温度で E_N の急激な低下が観察される。

表 2.4.3-1 熱処理に伴う組成の変化

熱処理温度 [°C]	熱処理時間 [min]	組成			E_N [%]
		Fe	Zr	N	
as-depo	-	75.9	7.3	16.8	11.1
250	4800	76.0	7.3	16.7	11.0
350	240	77.5	7.4	15.1	9.0
450	180	76.8	7.4	15.8	9.9
500	180	78.5	7.6	13.9	7.4
550	1140	83.2	8.0	8.8	1.0

図 2.4.3-1 には、熱処理前後の過剰窒素量(E_N)の熱処理前後での変化を示したものである。ここで横軸は、スパッタ中の窒素分圧である。熱処理は 550 °C で 4 時間行っている。成膜直後の膜中の過剰窒素量は成膜中の窒素ガス分圧に応じて増えて、20 % 近くまで増大するが、550 °C で 4 時間の熱処理を行うと、ほぼ、一定値(2~3 %)まで低下していることが分かる。

(4) 過剰窒素と磁気特性

膜中の過剰窒素の磁気特性への影響を調べるため、熱処理前に SiO₂ を磁性層表面に 800A 成膜してから熱処理を行った。これにより、熱処理前後での組成の変化は無くな

った。熱処理は 550 °C で 1 時間、磁界中で行い、磁気異方性を誘導している。図 2.4.3-2 は、過剰窒素量と誘導磁気異方性の関係を調べたものである。異方性磁界の強度は過剰窒素の増量とともに増大し、約 8 Oe で飽和している。これらのサンプルを、150 °C の温度で困難軸方向に磁場(1 kOe)を印加しながら再度熱処理を行った。図 2.4.3-3 は横軸に再熱処理時間、縦軸に異方性磁界強度をプロットしたものである。初期の異方性磁界方向を正とし、反転した場合を負の値で示している。容易軸の方向は再熱処理直後 1 時間以内に反転し、再熱処理時間の増加に伴って、初期の異方性磁界に対応した異方性磁界強度に収束していく。つまり、過剰窒素が多い膜ほど初期の誘導磁気異方性が大きく、また、逆方向に再誘導可能な異方性磁界も大きい。この結果より、過剰窒素量が誘導可能な磁気異方性磁界強度を支配していると考えられる。また、この誘導磁気異方性は 150 °C 程度の比較的低温であっても、可逆的に誘導可能である。図 2.4.3-4 は、異方性磁界強度と 1 MHz での透磁率の関係をプロットしたものである。ここで、負の異方性磁界に対応した透磁率は、容易軸方向の透磁率であり、正の異方性磁界に対応した透磁率が困難軸方向の透磁率である。縦軸の透磁率は $4\pi M_s$ で規格化した値である。過剰窒素が少ない場合(4.0 % と 8.9 % のケース)では、困難軸方向の透磁率は、限界値である $1/H_k$ に近い値を示しているが、 H_k が負(容易軸方向)になるとこれらのサンプルの透磁率は直ちに減衰してしまう。一方、比較的過剰窒素が多い場合(15 % 以上のケース)では、困難軸方向の透磁率は、あまり高くないが、容易軸方向で測定しても、ゼロにはならず、有限の透磁率が測定される。磁歪は、 $E_N = 4.0$ % のサンプルではほぼゼロ(0×10^{-6})であり、 E_N の増加に伴って単調に増加するが、 $E_N = 19.2$ % のサンプルでも高々 1.3×10^{-6} であった。

これらの結果より推定されることは、 E_N が比較的少ない場合は、コヒーレントな回転モードで H_k に対応した透磁率が得られているのに対して、 E_N が多くなっていくと、微視的には、容易軸方向が分散し、巨視的な容易軸とは異なった方向に容易軸を持つ領域が存在していると推定される。この微視的な容易軸の分散が、困難軸方向の透磁率を低下させる一方で、容易軸方向にも、ゼロでない透磁率を出現させていると考えられる。

(5) 窒素状態の解析

膜中の過剰窒素の状態を調べるため、ここでも、熱処理前に SiO₂ を磁性層表面に 800Å 成膜してから熱処理を行った。解析には X 線回折(XD)と X 線電子分光(XPS)を用いた。評価したサンプルの一覧を表 2.4.3-2 に示す。

Sample (a)と Sample (b)は純鉄のターゲットを用いて、成膜中の窒素分圧を変えて成膜したもので、Sample (c)～(f)は Fe₉₀Zr₁₀ のターゲットを用いて、成膜中の窒素分圧を変えて成膜したものである。Fe-N の二元系である Sample (a)と(b)の XPS の結果を図 2.4.3-5 に、Fe-Zr-N の三元系である Sample (c)と Sample (f)の XPS の結果を図 2.4.3-6 に示す。また、図 2.4.3-7 には Sample (a)と(b)の XD の結果を、図 2.4.3-8 には、Sample (c), (d), (e), (f)の XD の結果をそれぞれ示している。

表 2.4.3-2 サンプル一覧

Sample	組成			E_N [%]
	Fe	Zr	N	
a	94.1	–	5.9	–
b	82.0	–	18.0	–
c	81.6	7.5	10.9	4.0
d	78.0	7.2	14.8	8.9
e	73.2	6.7	20.1	15.5
f	70.4	6.5	23.1	19.1

二元系(FeN)の XD の結果(図 2.4.3-7)を見ると、Fe₄N(111)面のピークが窒素量とともに増加していることが分かる。一方、XPS の結果(図 2.4.3-5)から、窒素の 1s 電子のピーク(N_{1s})が二つ観察されているが、-397.5 eV のピークが窒素量の増加とともに増大していることから考えて、この-397.5 eV のピークが Fe₄N の N の 1s 電子と考えられる。残りの、-400.5 eV のピークが α-Fe の格子中に過飽和に侵入している N の 1s 電子と推定される。三元系(Fe-Zr-N)について見てみると、XPS(図 2.4.3-6)からは、α-Fe の格子中に過飽和に侵入している N からの-400.5 eV のピークと、Fe₄N からの-397.5 eV のピークの他に、-397 eV 付近にピークが観察されている。このピークは、特に Sample (f)で顕著である。Sample (f)の XD の結果からは、ZrN の(200)のピークが観察されており、この、-397 eV のピークは ZrN の N からのものと考えられる。XD の Sample (c)のピークは Fe(110)のほかに、ZrN(200)のブロードなピークが観察されているが、Fe₄N (111)

のピークは殆ど確認できない。しかし、Sample (c)の XPS の結果からは、-397, -397.5, -400.5 の 3ヶ所のピークが観察されていることから、Sample (c)にも、微量ではあるが、 Fe_4N も存在していると推定される。

これらの結果より、成膜中に取り込まれた窒素は、Zr を窒化して ZrN となるものや鉄と結合して Fe_4N なるもの以外に、 $550\text{ }^\circ\text{C}$ の熱処理後であっても、窒化物を形成しないで、 $\alpha\text{-Fe}$ の格子中に過飽和な状態で膜中に存在している窒素元素も存在すると考えられる。 $150\text{ }^\circ\text{C}$ という比較的低温で可逆的に誘導可能な磁気異方性は、この、 $\alpha\text{-Fe}$ の格子中に過飽和な状態で溶けている窒素の移動によって誘導されていると推定される。

(6) 結論

Fe-Zr-N 系薄膜について、膜中の窒素量と磁気特性の関係について調べた。その結果、以下のことが明らかになった

- ① 磁界中熱処理で、誘導可能な異方性磁界の大きさは、過剰窒素量と密接に関係している。
- ② 異方性を誘起している窒素は、 $\alpha\text{-Fe}$ の格子中に過飽和状態で固溶している窒素と推定され、これらは、 $150\text{ }^\circ\text{C}$ という比較的低温でも可逆的に誘導される。
- ③ 過剰窒素量が比較的少ないときは、透磁率は、ほぼ、限界値($1/H_k$)に近く、コヒーレントな磁化回転が起きていると推定されるが、過剰窒素量が増えてくると、膜中に微視的な異方性分散が現れ、困難軸方向の透磁率の低下を招く。

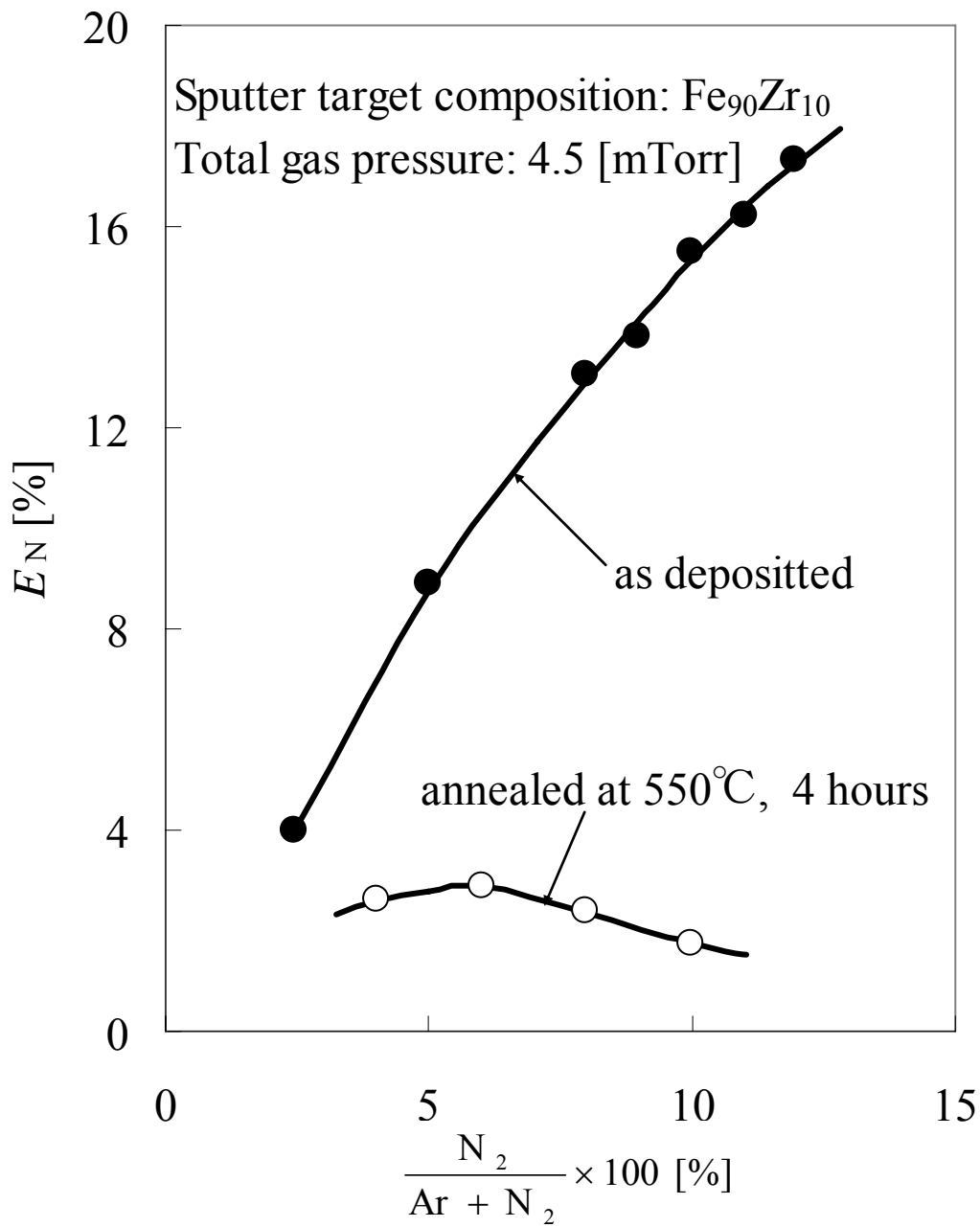


図 2.4.3-1 熱処理前後での過剰窒素量 E_N の窒素分圧依存性[B12]

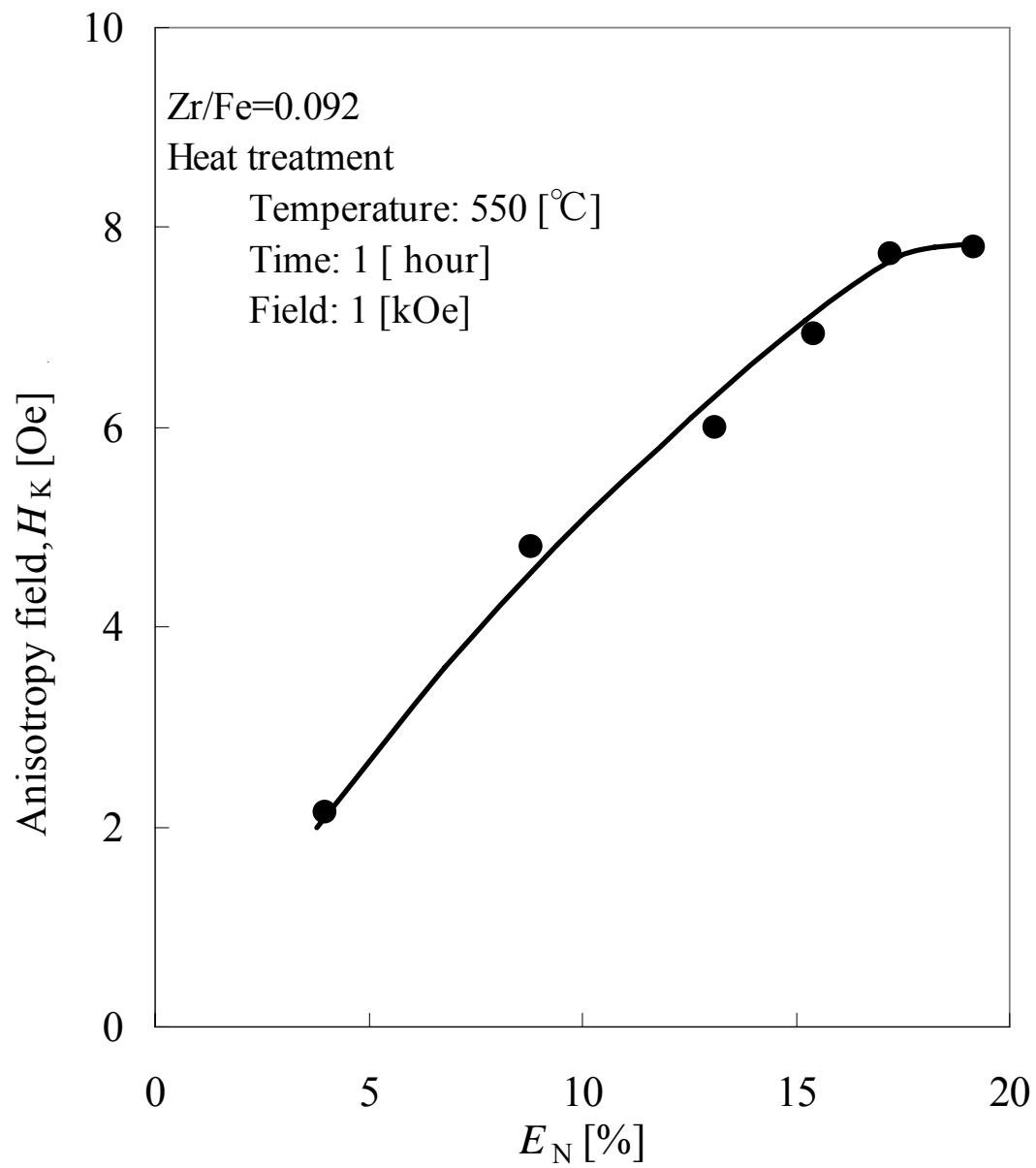


図 2.4.3-2 膜中の過剰窒素量 E_N と異方性磁界 H_k の関係 [B12]

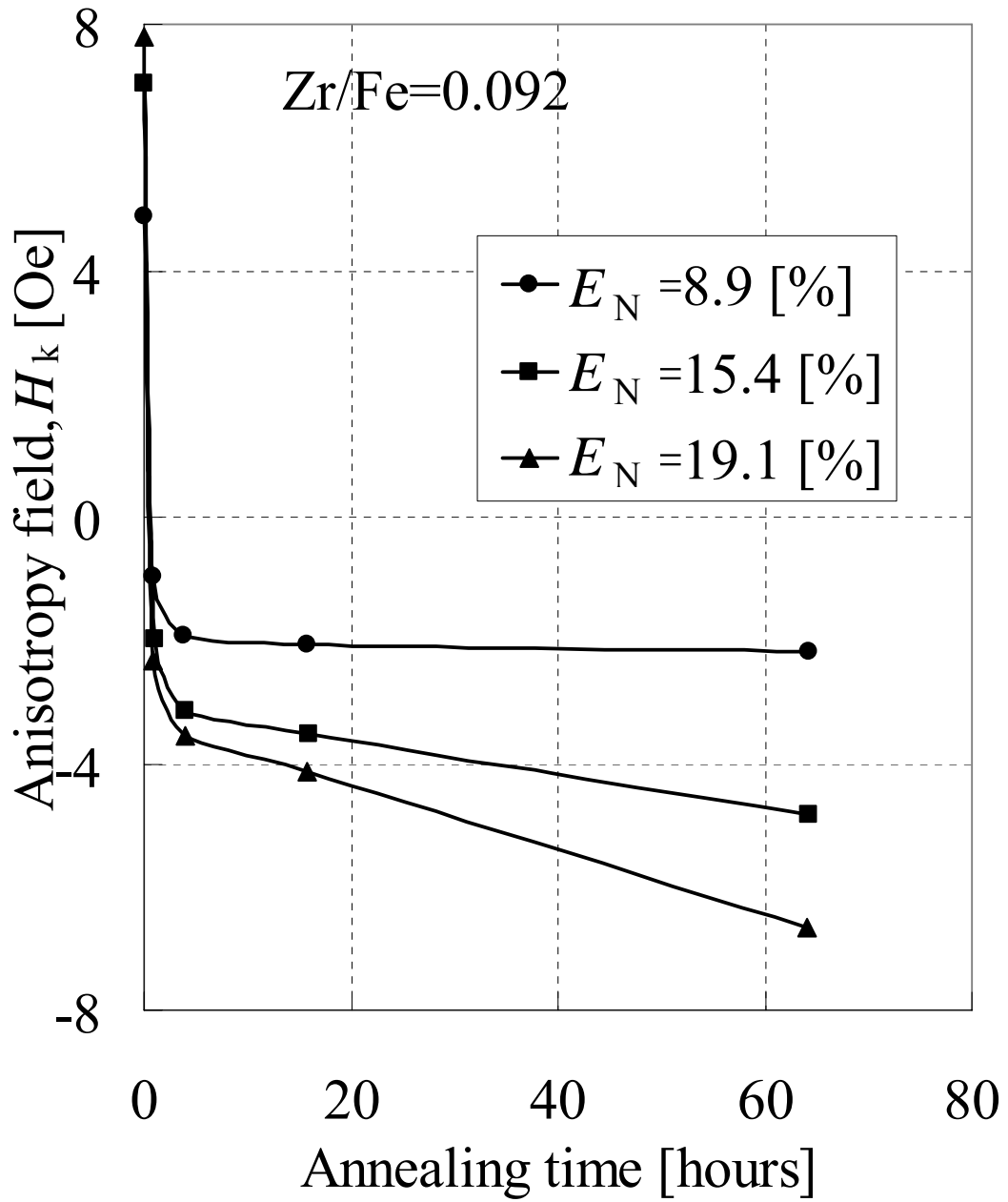


図 2.4.3-3 異方性磁界の再磁場中熱処理(150 °C)時間依存性(困難軸方向に磁場印加) [B12]

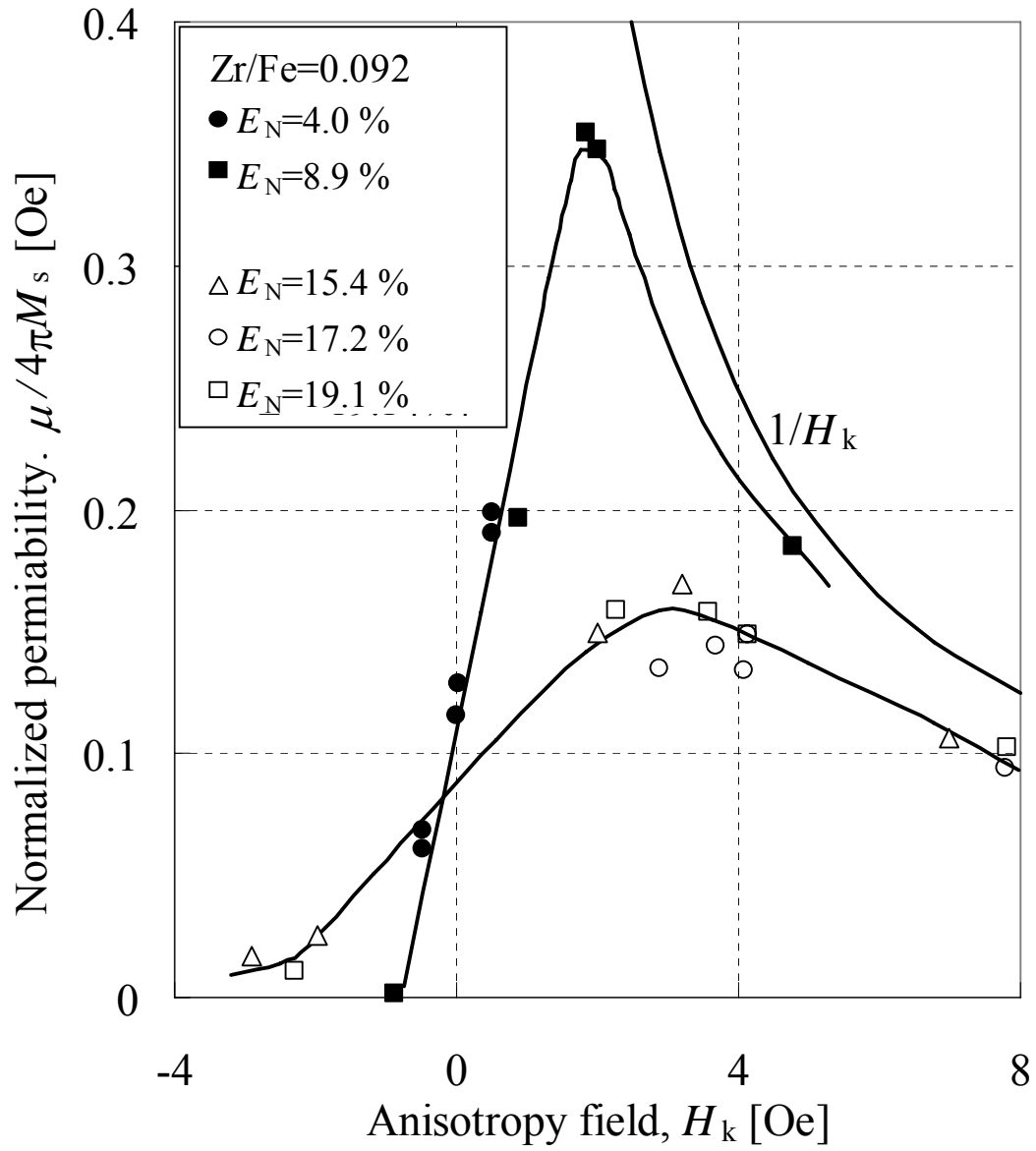
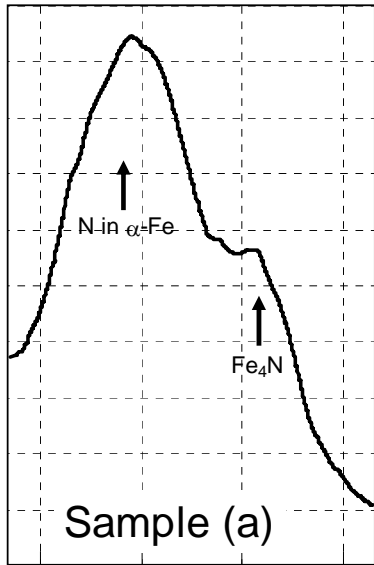
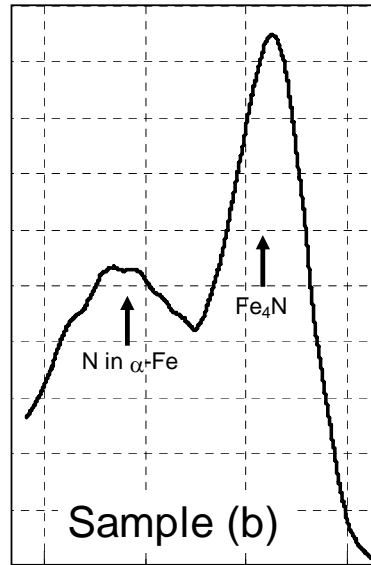


図 2.4.3-4 異方性磁界と透磁率の関係 (透磁率は $4\pi M_s$ で規格化) [B12]

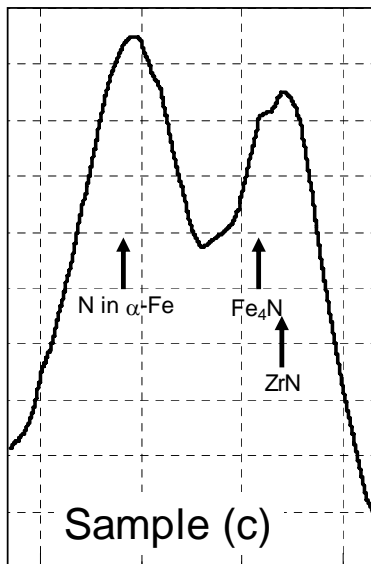


-402 -400 -398 -396
eV

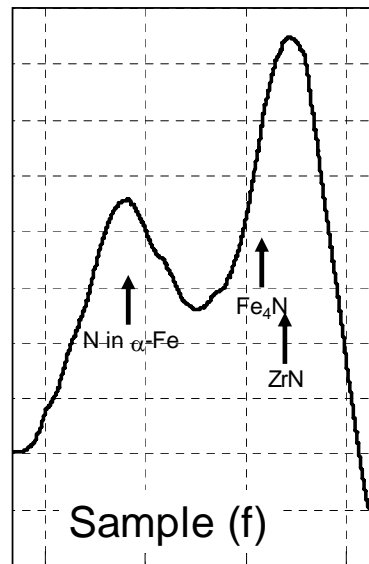


-402 -400 -398 -396
eV

図 2.4.3-5 XPS 測定結果 (a) $\text{Fe}_{94.1}\text{N}_{5.9}$, (b) $\text{Fe}_{82}\text{N}_{18}$ [B12]



-402 -400 -398 -396
eV



-402 -400 -398 -396
eV

図 2.4.3-6 XPS 測定結果 (c) $\text{Fe}_{81.6}\text{Zr}_{7.5}\text{N}_{10.9}$, (f) $\text{Fe}_{70.4}\text{Zr}_{6.5}\text{N}_{23.1}$ [B12]

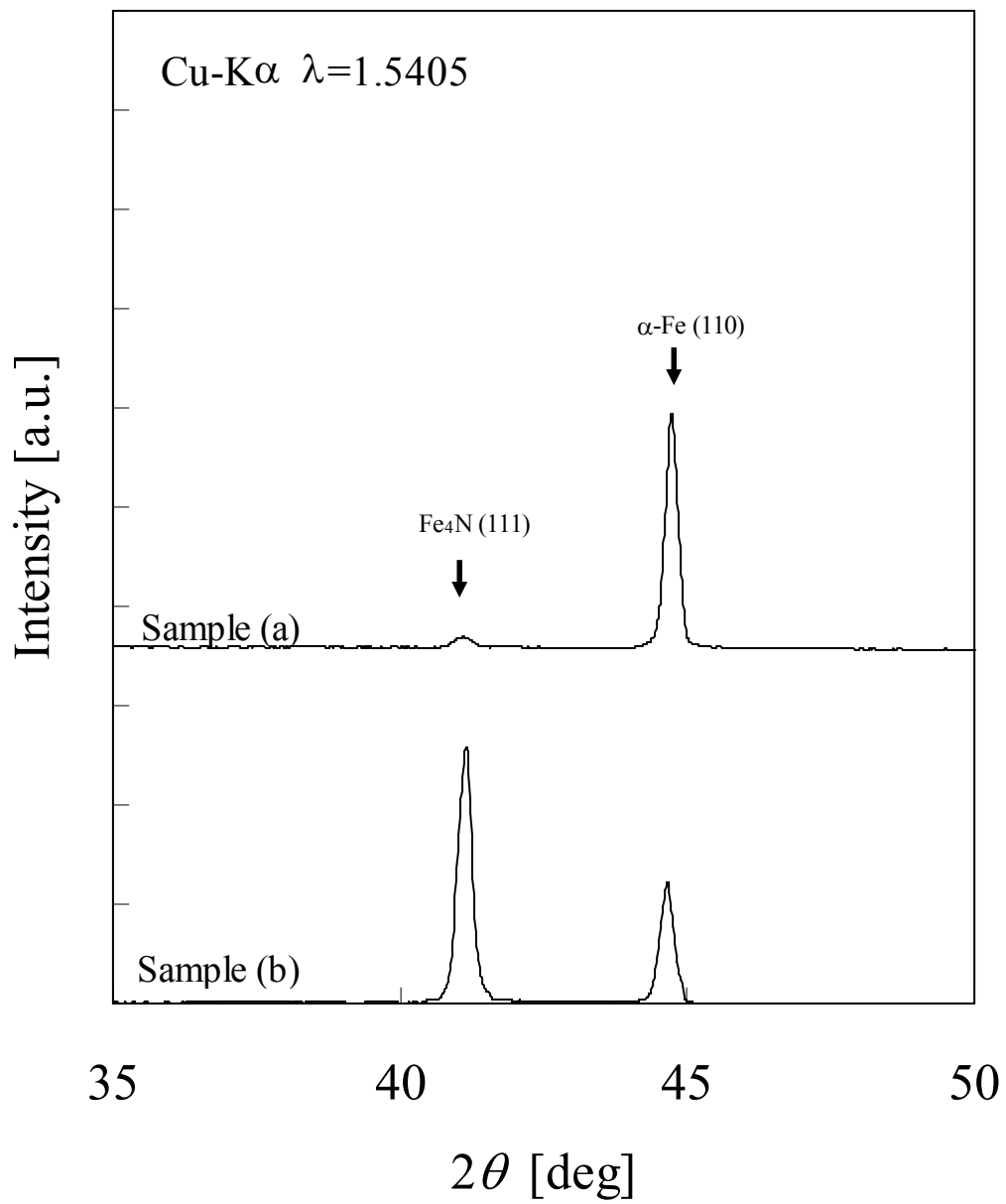


図 2.4.3-7 X 線回折パターン (a) Fe_{94.1}N_{5.9}, (b) Fe₈₂N₁₈ [B12]

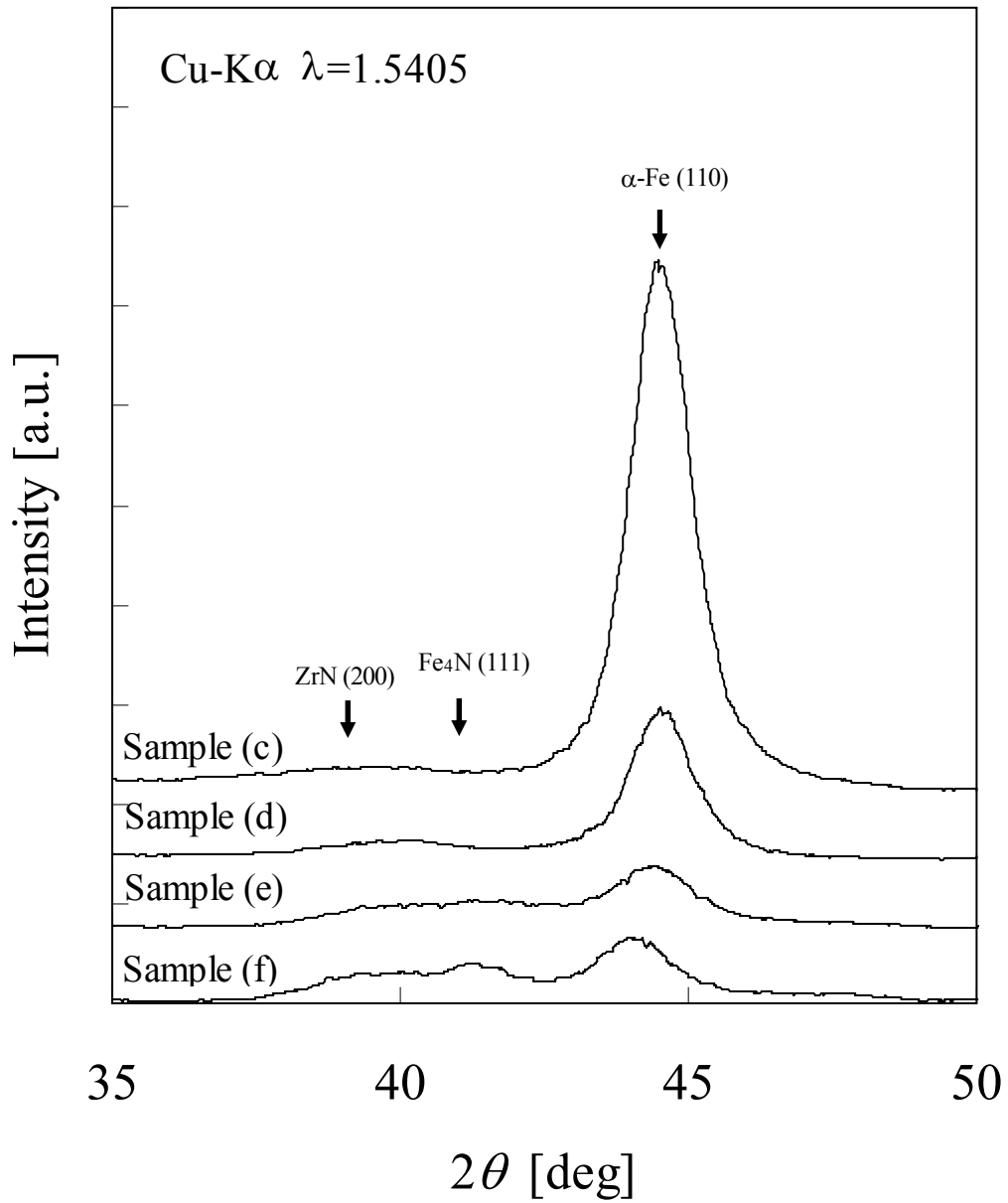


図 2.4.3-8 X線回折パターン (c)Fe_{81.6}Zr_{7.5}N_{10.9}($E_N=4.0$ %),
 (d)Fe₇₈Zr_{7.2}N_{14.8}($E_N=8.9$ %), (e)Fe_{73.2}Zr_{6.7}N_{20.1}($E_N=15.5$ %),
 (f)Fe_{70.4}Zr_{6.5}N_{23.1}($E_N=19.1$ %) [B12]

§ 2.4.4 まとめ

本節において、窒素系-鉄基微結晶軟磁性薄膜について調べてきた。その結果、以下のことが明らかになった。

- ① Fe-X-N (X=Zr, Hf, Ta, Nb)は、スパッタ成膜した後、熱処理を施すことにより、優れた軟磁性を示す組成域が存在する。
- ② 上記現象は、スパッタ直後に非晶質であったものが、熱処理によって、微結晶を析出させることによって実現している。
- ③ Fe-Zr-N, Fe-Hf-N は特に優れた軟磁性を広い組成域で示す。
- ④ Fe-Zr-N, Fe-Hf-N は熱処理に伴って窒素の離脱による組成の変化が観察されたが、Fe-Ta-N, Fe-Nb-N は殆どのケースで組成の変化はない。
- ⑤ Fe-Zr-N 系は磁場中熱処理によって数エルステッドの異方性を誘導できるが、これは α -Fe の bcc 格子中に固溶した窒素が関与した異方性と推定される。

第5節 硼素系鉄基微結晶軟磁性薄膜

§ 2.5.1 はじめに

前節においては、鉄基二元合金(Fe-X)をスパッタターゲットに用いて、窒素を含むスパッタガスによる反応性スパッタ法により、Fe-X-Nの三元系組成薄膜を作製し、熱処理に伴う微結晶の析出と、それによる軟磁性の出現について調べてきた。特に、Fe-Zr-Nは広い軟磁性組成域を示し、素材コスト的にも有望であることから、詳細に調査した。これら膜は、過剰窒素量の制御によって、異方性磁界強度を調整できるという特徴を有しているが、一方で、この特徴は、熱処理に伴う窒素離脱を自由に制御できなければ、意図しない特性になってしまうという欠点にもなりうるものである。一方Fe-Zr合金はこれ以外にも、炭化スパッタ膜(Fe-Zr-C)[B14], [B15]や硼素添加薄帯(Fe-Zr-B)[B16]において優れた軟磁性を示すことが報告されている。この場合、熱処理に伴う組成の変化は発生しないと推定される。そこで、まず、種々の組成のFe-Zr-Bスパッタ膜を作製し、検討したが、十分な軟磁性は示さなかった。つまり、Fe-Zr-Bからなる三元系は、急冷薄帯では軟磁性を示すが、スパッタ薄膜では軟磁性を示さないという結果となった。これらの系の軟磁性出現の要件は、

① 磁氣的に結合した微結晶状態であり、局所的な異方性分散が小さいこと[B17], 及び

② 磁歪が十分に低いこと

が必要と考えられる。ここで、薄帯と薄膜の違いについて考えると、

① スパッタ膜の面内での結晶方位がランダムでなく、膜厚方向に容易軸を形成し微結晶ではあるが結晶磁気異方性の影響を排除できない。

② スパッタ膜特有の配向により磁歪が薄帯と異なっており十分に小さくない

③ 基板に束縛されたスパッタ膜は、薄帯よりも磁歪の影響を受けやすい

などの理由が想定される。特に基板からの束縛を考える場合、膜にかかる応力の方向(圧縮もしくは引っ張り)と磁歪の正負の組み合わせはモーメントの面内回転を実現する上で重要である。即ち、薄膜の残留応力が、面内方向に引っ張りであれば、磁歪は、「ゼロもしくは若干正」、であることが好ましく、逆に、残留応力が面内方向に圧縮ならば、磁歪は、「ゼロ若しくは若干負」であることが好ましい。そこで、磁歪調整を目的に、第四元素として、Co, Ni, Cr, Vの添加を検討した。その結果、上記いずれの元素添加によつ

でも負の膜磁歪を正へと変化させ、数 at%の添加で軟磁気特性が著しく改善されることを確認した。この時、全ての膜の残留応力は面内方向に引っ張りであった。特に Co 添加膜においては、熱処理後で、飽和磁束密度が 18kG、透磁率(at 1MHz)が 5000 を超える膜が得られた。本節では、第四元素添加に伴う軟磁気特性改善の効果、及びこれらの元素の結晶性に及ぼす影響について論ずる[B13].

§ 2.5.2 Fe-Zr-B-M (M=Co, Ni, Cr, V)の軟磁気特性

(1) 実験方法

成膜は種々の組成の Fe-B の二元系スパッタターゲットの上に Zr 及び第四元素からなるチップを配して、もしくは、各種組成の Fe-Zr-B 系三元スパッタターゲットを作製し、ターゲットの上に第四の元素からなるチップ (5 mm角) を適当に配して変化させ RF スパッタ法で成膜し、膜組成は、ICP 発光分光分析によって決定した。熱処理は、10 Torr の減圧窒素雰囲気中で、約 1 kOe の磁界を印加した状態で、350 °C、450 °C、550 °Cで各 1 時間ずつ順次行った。X 線回折と飽和磁束密度の熱処理温度依存性以外の諸特性は、すべて 550 °C熱処理後のものである。保磁力は 50 Hz *B-H*ループトレーサーを用いて、主に容易軸(熱処理中の磁場印加方向)について評価し、透磁率は 8 の字コイル法で、磁歪は次節で説明する方法を用いて正負のみを判定した。

(2) 第四元素添加に伴う磁歪変化

表 2.5.2-1 は、第四元素として Co を添加した場合の磁歪の正負の変化を示したものである。これらの薄膜は Fe₉₅B₅の二元系スパッタターゲットの上 Zr 及び第四元素として Co のチップを配して成膜したものである。第四元素を添加しない Fe-Zr-B 三元系薄膜の磁歪が負であるのに対して、Co 添加量を増やしていくとゼロを通過して正へと変化していることがわかる。

表 2.5.2-1 Fe-Zr-B-Co 系の組成と磁歪（組成は at%）

Fe	Zr	B	Co	磁歪
89.7	7.2	3.1	-	<0
87.3	7.2	3.0	2.5	~0
86.5	7.1	3.0	3.4	≥0
83.6	7.0	2.8	6.6	>0

表 2.5.2-2 は、第四元素として、Ni, Cr, V を添加した場合の磁歪の正負を示したものである。いずれの添加元素によっても、磁歪を正の方向に変化させていることが分かる。これらの結果は、いずれも、550 °C、1 時間の熱処理後のものであり、全ての膜で、膜中応力は、面内方向に引っ張り(膜面を上にして凹形状に変形した状態)応力が残留していた。

表 2.5.2-2 Fe-Zr-B-M(M=Ni, Cr, V)系の組成と磁歪（組成は at%）

Fe	Zr	B	Ni	Cr	V	磁歪
86.8	5.6	4.0	3.6	-	-	~0
87.3	5.7	4.0	-	2.9	-	≥0
88.7	5.7	4.1	-	-	1.5	~0

(3) B-Hループ

図 2.5.2-1 に $\text{Fe}_{89.6}\text{Zr}_{6.3}\text{B}_{4.2}$ 薄膜の B-H ループを、また、図 2.5.2-2 に $\text{Fe}_{87.6}\text{Co}_{3.2}\text{Zr}_{5.8}\text{B}_{3.3}$ 薄膜の B-Hループを示す。いずれの膜も成膜後、約 1 kOe の磁界中で 550 °C、1 時間の熱処理を施した後のものである。 $\text{Fe}_{89.6}\text{Zr}_{6.3}\text{B}_{4.2}$ 薄膜は、面内での異方性は無いが、熱処理中の印加磁場方向を容易軸として記している。 $\text{Fe}_{89.6}\text{Zr}_{6.3}\text{B}_{4.2}$ 薄膜は Fe-Zr-B の三元系ターゲットを用いて成膜したもので、 $\text{Fe}_{87.6}\text{Co}_{3.2}\text{Zr}_{5.8}\text{B}_{3.3}$ 薄膜は、同ターゲットの上に Co チップを配して成膜したものである。 $\text{Fe}_{89.6}\text{Zr}_{6.3}\text{B}_{4.2}$ 薄膜の磁歪

は負で、 $\text{Fe}_{87.6}\text{Co}_{3.2}\text{Zr}_{5.8}\text{B}_{3.3}$ 薄膜の磁歪は若干正であった。Fe-Zr-B 三元系薄膜の保磁力が 6 Oe 程度であるのに対して、Co を僅か 3 % 程度添加したものは、保磁力の著しい低減が見られ、容易軸で約 1 Oe、困難軸で、0.4 Oe 程度の低保磁力を実現している。

(4) 透磁率の周波数特性

図 2.5.2-3 は、Co 添加、Cr 添加、及び無添加の膜の透磁率の周波数依存性を示すものである。これらの膜も、成膜後、約 1 kOe の磁界中で 550 °C、1 時間の熱処理を施している。無添加の膜の透磁率は 500 に満たないのに対して、Co もしくは、Cr を添加した膜の透磁率は、1 MHz で約 5,000 以上、30 MHz でも 2,000 以上を示し、第四元素添加に伴う軟磁性の著しい改善が確認できる。

(5) 組成と保磁力

図 2.5.2-4 は、Co 添加量が 3.2 ± 0.2 at% の時の、容易軸の保磁力の組成依存性を、Fe+Co, Zr, B の擬三元図上にプロットしたものである。成膜は、Fe-Zr-B からなる 12 種類の組成のターゲット (4 インチ ϕ) を用いて、ターゲット上に、5mm 角の Co チップを、4 枚配して行った。保磁力はいずれも熱処理後のものである。Fe+Co が 90 % を超える組成に軟磁性の中心組成(保磁力が極小値になる組成)が存在し、この中心組成の膜($\text{Fe}_{87.6}\text{Co}_{3.2}\text{Zr}_{5.8}\text{B}_{3.3}$)の飽和磁束密度は 18kG に達していた。

(6) 熱処理と結晶化

図 2.5.2-5 は、成膜直後、及び、350 °C、450 °C、550 °C の各温度で 1 時間の熱処理を行ったのち、室温で印加磁界 10 kOe で測定した磁化($4\pi M_s$)を、Co 添加、Ni 添加、無添加、Cr 添加、V 添加の 5 種のサンプルについて示したものである。Co 添加、または Ni 添加した膜は、熱処理前に既に 8kG 程度の $4\pi M_s$ を示すのに対して、Cr 添加、V 添加、もしくは無添加の膜は 2 kG 程度しかなく、熱処理温度 350 °C の段階では、これらは、ほとんど変化していない。熱処理温度を 450 °C まで上げると、Co 添加、Ni 添加の膜は急激な磁化の上昇が観察されるが、Cr 添加や Ni 添加の膜で急激な磁化の上昇が観察されるのは、550 °C の段階であり、無添加の膜では、これらの中間的な変化を示した。図 2.5.2-6 には、各熱処理温度での、X 線回折の測定結果を、添加元素ごとに示し

ている。熱処理前の膜はいずれの添加元素においても、 α -Fe の(110)面に対応する位置のみにブロードなピークを持つアモルファス的な膜になっている。これは、350 °Cの熱処理後でも、ほとんど変わらない。これは、この間で磁化にほとんど変化がないことと対応している。その後、熱処理温度を 450 °Cまで上げると、Co または Ni 添加膜では、 α -Fe の(110)面に対応する位置に、はっきりしたピークが現れる。Cr または V 添加膜で同様なピークが観察されるのは、熱処理温度 550 °C段階であり、このピークが現れる(結晶化が進む)温度と磁化の急激な上昇が観察された温度はよく一致している。つまり、熱処理に伴う磁化の上昇は、 α -Fe の析出のためと言える。表 2.5.2-3 に 550 °C熱処理後の(110)面間隔を、X 線回折ピーク位置から算出した結果一覧を示す。無添加または、Co 添加及び Ni 添加の膜は、純鉄の値と、ほぼ一致しているが、これらの元素添加で、面間隔は、若干ではあるが広がる方向である。一方、Cr や V を添加した膜は、面間隔の明らかな減少が確認できる。

表 2.5.2-3 bcc (110)面の間隔

Sample	d(110)
$\text{Fe}_{87.5}\text{Zr}_{5.8}\text{B}_{3.3}\text{Co}_{3.2}$	2.026 Å
$\text{Fe}_{86.8}\text{Zr}_{5.6}\text{B}_{4.0}\text{Ni}_{3.6}$	2.026 Å
$\text{Fe}_{89.6}\text{Zr}_{6.3}\text{B}_{4.0}$	2.025 Å
$\text{Fe}_{87.3}\text{Zr}_{5.7}\text{B}_{4.0}\text{Cr}_{2.9}$	2.021 Å
$\text{Fe}_{88.7}\text{Zr}_{5.7}\text{B}_{4.1}\text{V}_{1.5}$	2.016 Å

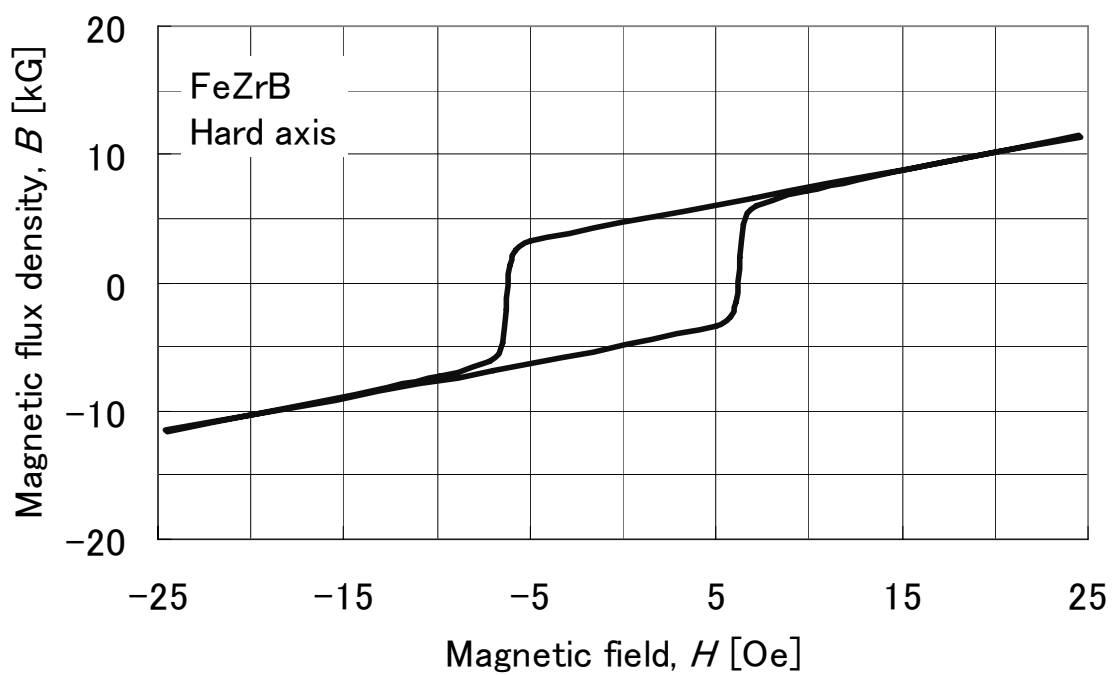
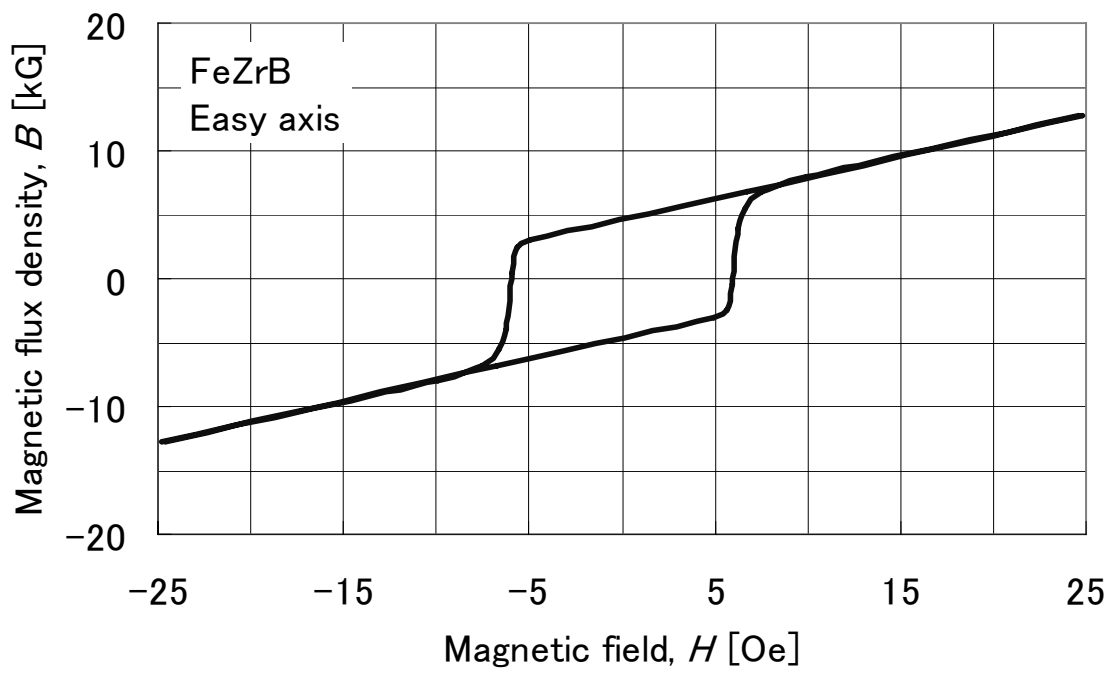


図 2.5.2-1 $\text{Fe}_{89.6}\text{Zr}_{6.3}\text{B}_{4.2}$ 薄膜の B - H ループ [B13]

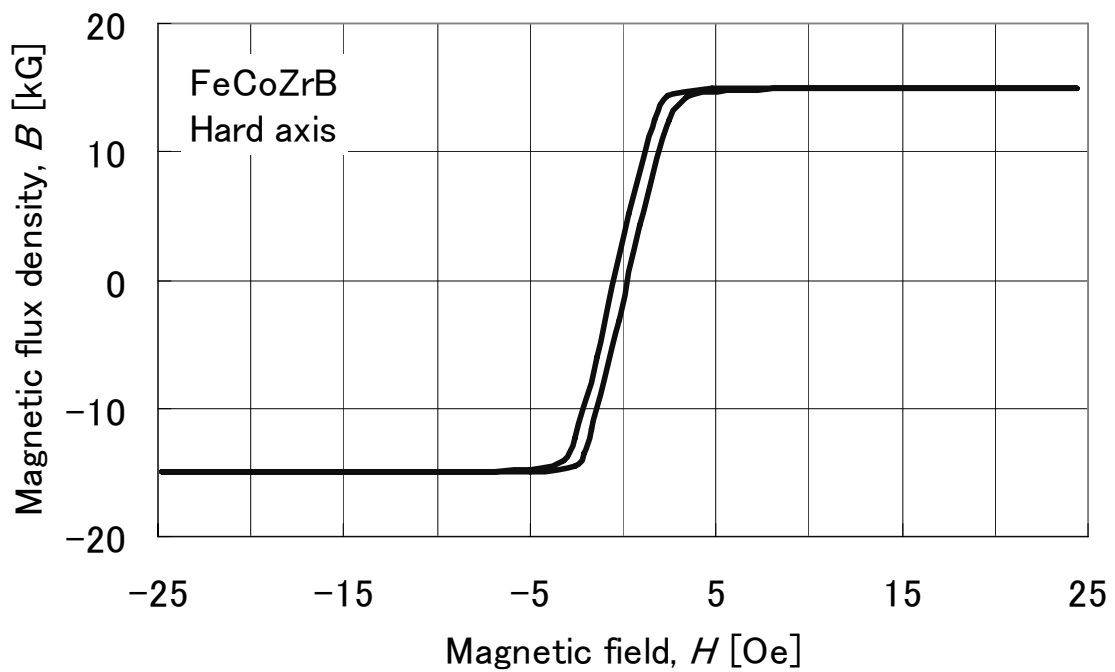
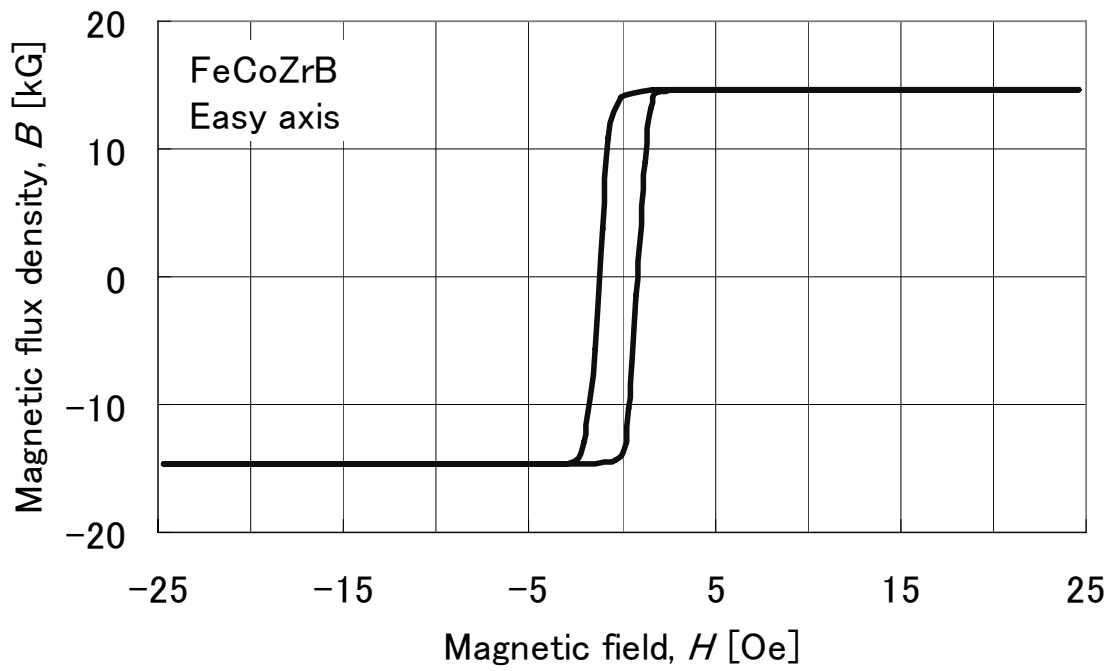


図 2.5.2-2 $\text{Fe}_{87.6}\text{Co}_{3.2}\text{Zr}_{5.8}\text{B}_{3.3}$ 薄膜の B-H ループ [B13]

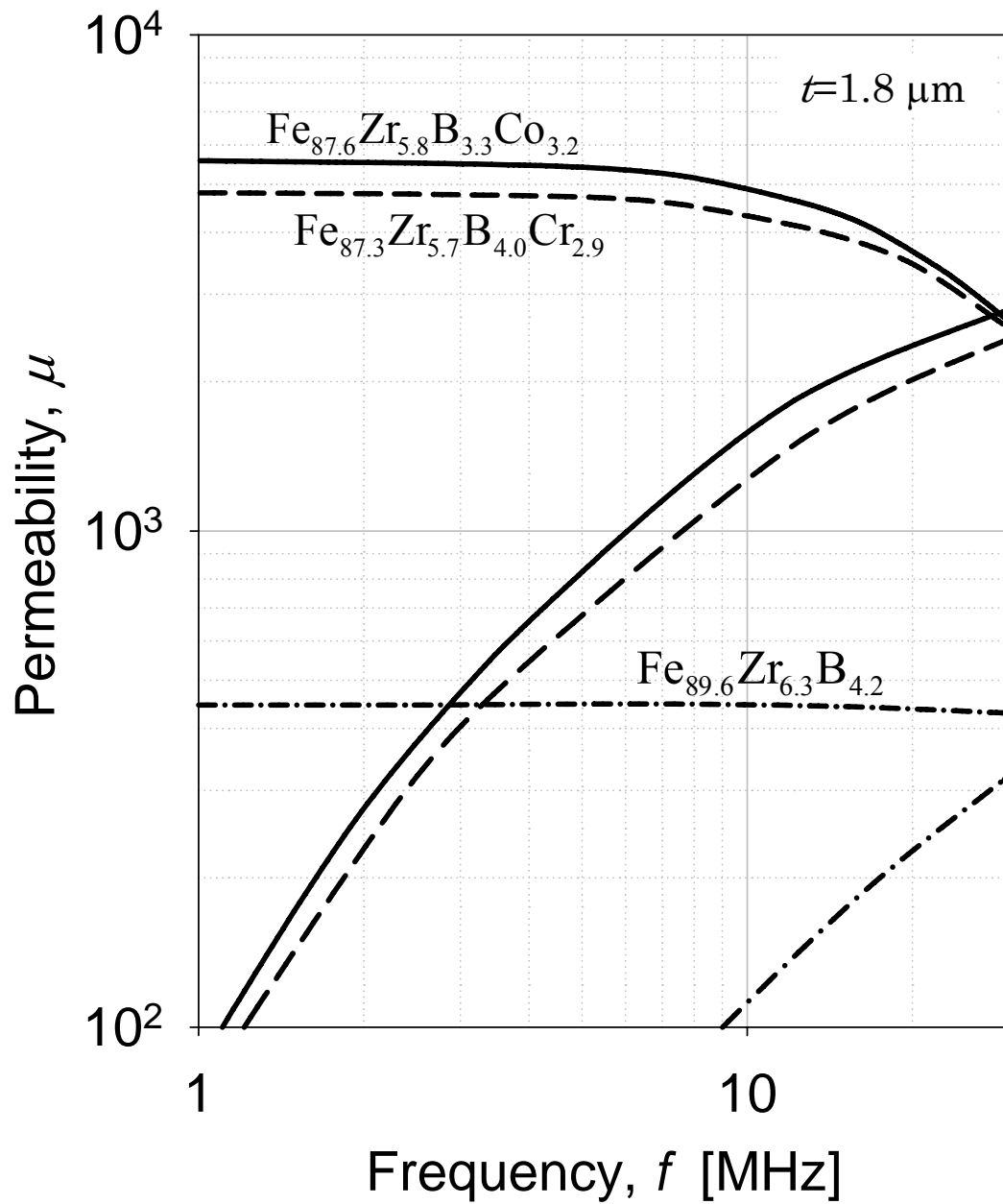


図 2.5.2-3 Fe-Co-Zr-B, Fe-Cr-Zr-B 及び Fe-Zr-B 薄膜の透磁率の周波数特性(膜厚 $t=1.8 \mu\text{m}$) [B13]

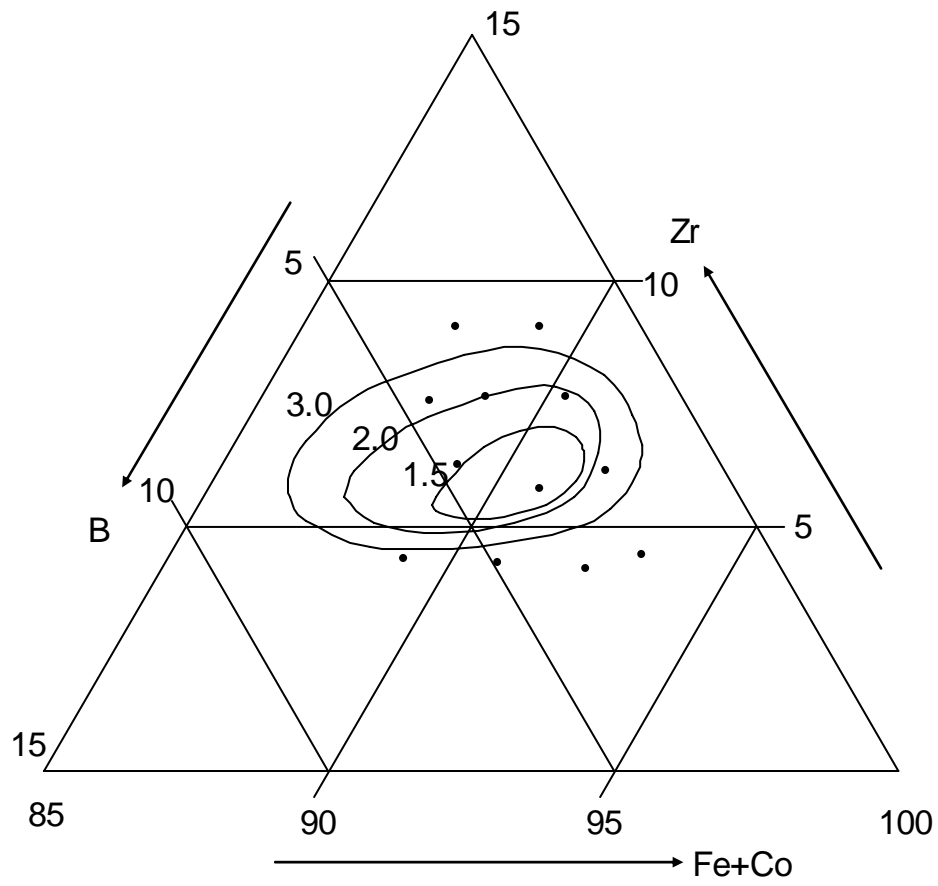


図 2.5.2-4 保磁力の組成依存性($C_0 = 3.2 \pm 0.2\%$) [B13]

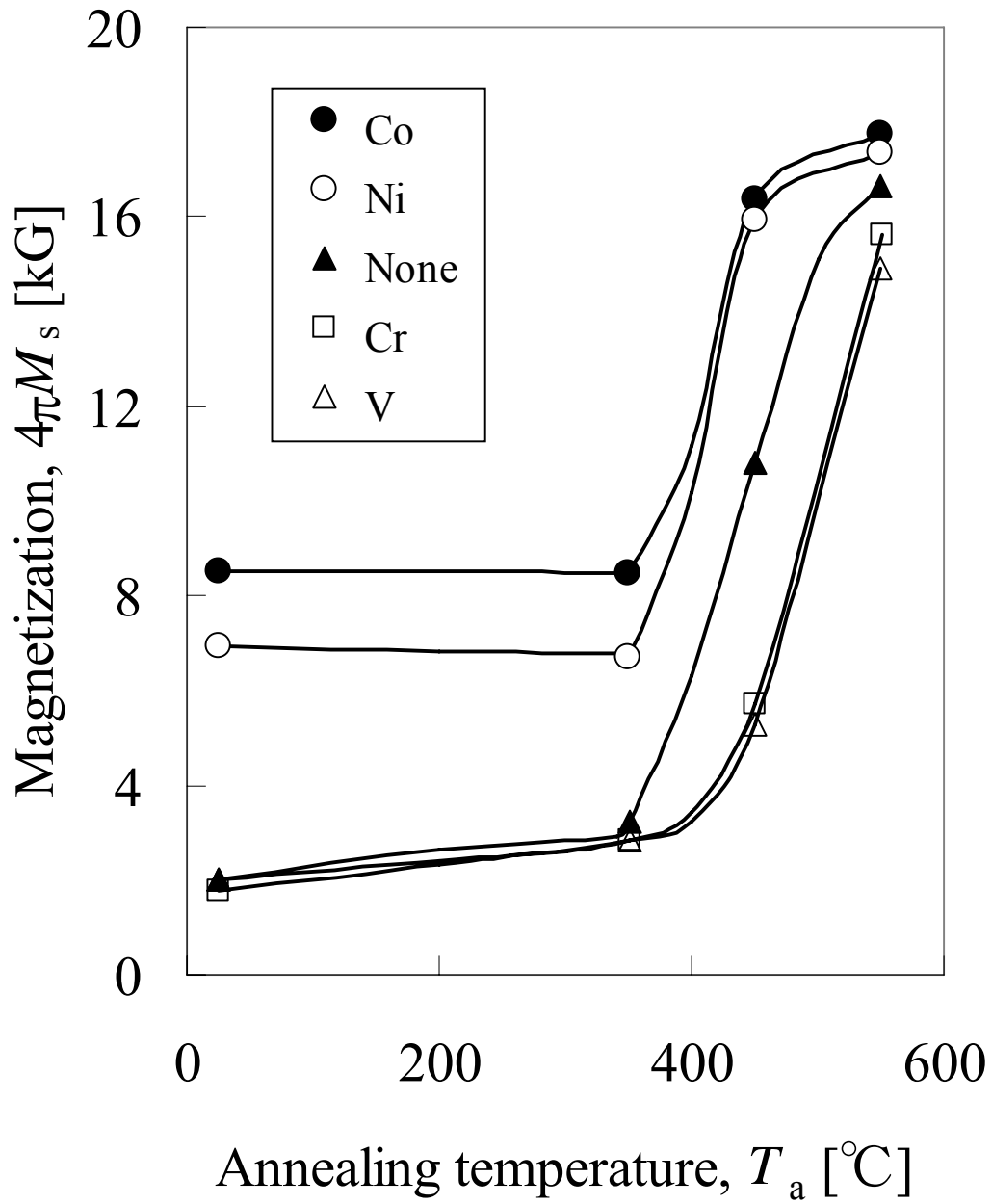


図 2.5.2-5 熱処理に伴う磁化の変化 [B13]

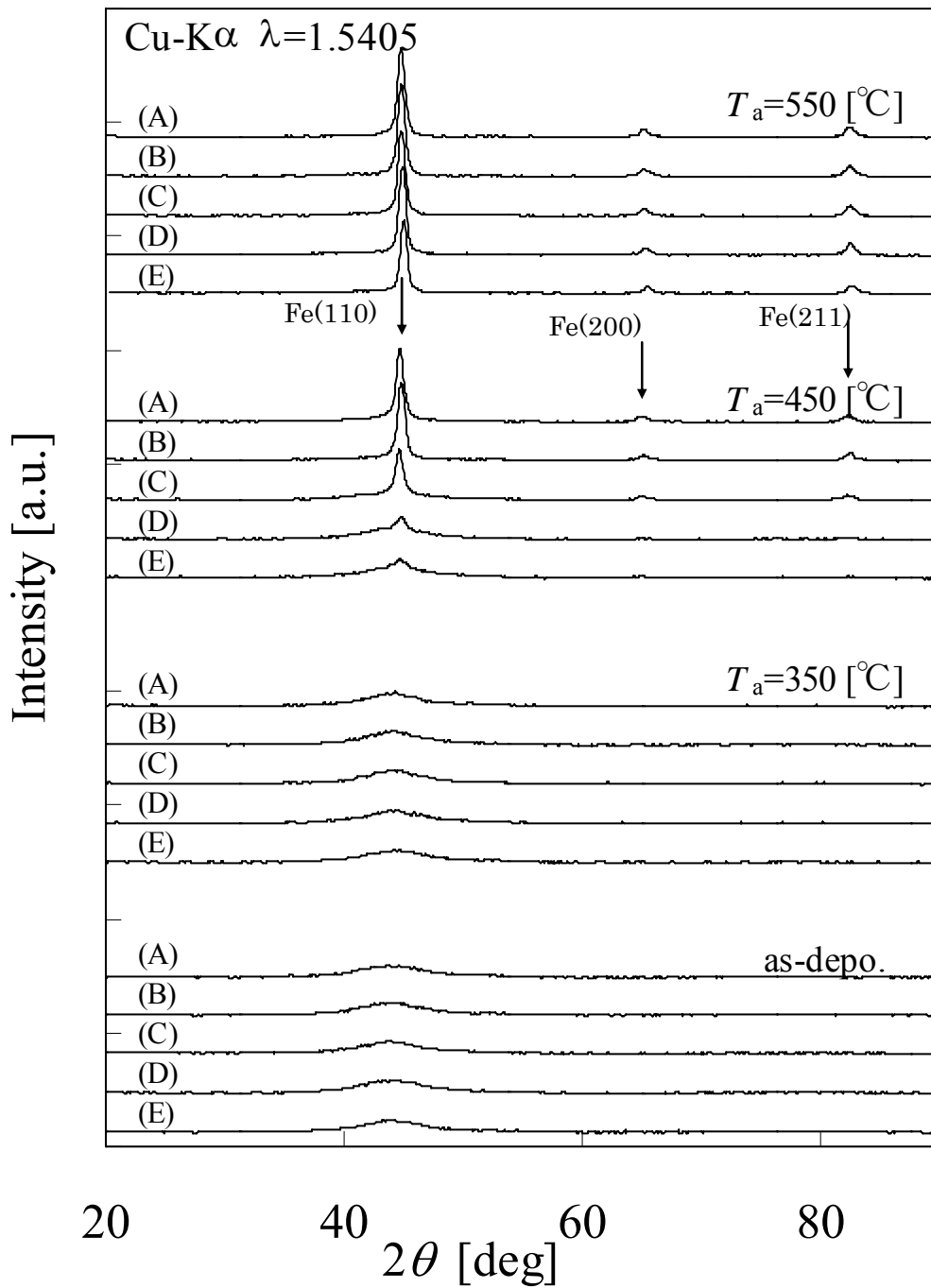


図 2.5.2-6 熱処理に伴う X 線回折パターンの変化

(A)Co 添加($\text{Fe}_{87.6}\text{Zr}_{5.8}\text{B}_{3.3}\text{Co}_{3.2}$), (B)Ni 添加($\text{Fe}_{86.8}\text{Zr}_{5.6}\text{B}_{4.0}\text{Ni}_{3.6}$),
 (C)無添加($\text{Fe}_{89.6}\text{Zr}_{6.3}\text{B}_{4.2}$), (D)Cr 添加($\text{Fe}_{87.3}\text{Zr}_{5.7}\text{B}_{4.0}\text{Cr}_{2.9}$),
 (E)V 添加($\text{Fe}_{88.7}\text{Zr}_{5.7}\text{B}_{4.1}\text{V}_{1.5}$) [B13]

§ 2.5.3 まとめ

本節において、硼素系-鉄基微結晶軟磁性薄膜について調べてきた。Fe-Zr-B 薄膜に Co, Ni, Cr, V を添加すると、いずれの元素添加によっても軟磁気特性は改善される。これは、膜磁歪が負の値から、上記いずれの元素添加によってもゼロもしくは若干正の値へと変化したことに対応している。今回の実験では、熱処理後の膜中応力は「引っ張り」応力が残留していたが、熱膨張係数の大きな基板を利用すると、熱処理後の残留応力は圧縮方向へと変化する。この場合もこれらの元素添加によって磁歪の絶対値をゼロ近傍に調整することが重要であろう。但し、この場合は、添加元素量を調整して、磁歪を若干負の値にするほうが、磁化の面内回転を実現する上で好ましいと推定される。

結晶化に及ぼす添加元素の効果は、Co や Ni を添加したものと、Cr や V を添加したものでは、逆の作用をしている。即ち、Co や Ni を添加したものは、無添加のものに比べて結晶化温度が低下し、析出した bcc の(110)面間隔は、若干であるが拡大しているのに対して、Cr や V を添加したものは、結晶化温度を上昇させ、(110)面間隔は、縮小している。以下に Fe-Zr-B-M(M=Co, Ni, Cr, V)スパッタ膜の軟磁気特性についてまとめる。

- ① Co, Ni, Cr, V 元素の添加は磁歪を正の方向に変化させる。
- ② 上記磁歪の変化に伴い、その値がゼロもしくは若干正の時、透磁率は著しく向上する。
- ③ Co や Ni の添加は結晶化温度を低下させ、熱処理後の結晶面間隔及び飽和磁束密度を若干向上させる。
- ④ Cr や V の添加は結晶化温度を上昇させ、熱処理後の結晶面間隔及び飽和磁束密度を若干低下させる。

第 6 節 軟磁性薄膜の磁歪測定方法

§ 2.6.1 はじめに

軟磁性は磁化回転に伴うエネルギー増減を小さくすることによって得られる特性である。アモルファスや微結晶材料の場合、結晶磁気異方性に起因する磁化回転時のエネルギーの増減は、十分小さいため、残りの指標として、磁歪をゼロ近傍に制御することが重要となる。薄膜の磁歪を測定する方法として、従来から、薄膜の磁化方向を変えたときの基板のソリの変化を、光歪などを用いて、定量評価し、磁歪に換算する方法があるが、この場合、膜のヤング率が既知でなくてはならない。ところが、第 5 節や第 4 節で議論したような微結晶薄膜は、バルク状態で作製することは困難であり、薄膜形状によってのみ得られるものである。この場合、基板に束縛された薄膜のヤング率を測定しないと、磁歪が定量できないということになってしまう。一方、M. Takahashi[B18]らによって、熱膨張係数に面内で異方性がある基板を加熱して磁性膜を成膜し、室温まで冷却したときの磁気異方性と応力異方性、及び磁歪の関係について定量的議論がなされている。これは、ヤング率に依存しないで応力異方性から磁歪を求めることを可能とするものである。しかし、熱膨張係数なども未知の磁性膜に対して、また、さらに、非可逆的な熱プロセス(熱処理に伴う結晶化)を含む系に対してこれを拡張することは容易ではない。そこで、実験的にこの応力異方性を求め、膜のヤング率などに依存しないで磁歪を定量評価することを試みた [B19]。

§ 2.6.2 測定原理

基板の熱膨張係数と熱処理後の膜の残留応力の間には比較的線形な関係がある。そこで種々の熱膨張係数を持つ基板に磁性膜を成膜し、その熱処理後の残留応力を測定すれば、熱膨張係数に異方性のある基板を用いたときの膜中応力の異方性を外挿または内挿によって見積もれる。この応力の異方性と $B-H$ ループの異方性の関係から磁歪を定量することが可能となる。ここで薄膜面内に xy 座標を考え、 x 軸方向の残留応力を σ_x 、 y 軸方向の残留応力を σ_y 、として、仮に磁歪 $\lambda > 0$ で、 $\sigma_x < \sigma_y$ (応力は圧縮方向を正)とすると、容易軸は x 方向となる。ここで、 y 軸方向に磁界を印加し、磁化方向を y 軸に向け

るとき、この磁化回転に伴う残留応力の変化によるエネルギーの変化は(薄膜の剛性に比べて基板の剛性は十分に大きいと仮定できるので)、

$$\Delta E = \frac{3}{2} \lambda (\sigma_y - \sigma_x) \quad (2-32)$$

である。この値は、磁歪誘導による異方性磁界を H_λ とした場合、 $(1/2) H_\lambda M_s$ に等しく、これを λ について解けば

$$\lambda = \frac{H_\lambda M_s}{3(\sigma_y - \sigma_x)} \quad (2-33)$$

となる。即ち、 $(\sigma_y - \sigma_x)$ 及び、 H_λ を求めることにより、磁歪 λ を得ることができる。

§ 2.6.3 測定方法

(1) $\Delta\sigma = (\sigma_y - \sigma_x)$ の求め方

薄膜に応力が残留すると、基板を円弧状に変形させる。この変形量を、触針式膜厚計を用いて測定し、残留応力を求めることができる。図 2.6.3-1 に示すように、触針式膜厚計の測定長 l 、測定された反り高さ d とした場合、 d^2 の高を無視して、この曲率(曲率半径の逆数)は

$$\gamma = \frac{8d}{l^2} \quad (2-34)$$

である。

円形の基板に薄膜を成膜し、基板が、おわん形状に変形した場合を考える。成膜前の基板の反り(曲率 γ_i)と、熱処理後の基板の反り(曲率 γ_a)を、触針式膜厚計を用いて測定し、残留応力を

$$\sigma = \frac{E_S t_S^2}{6(1-\nu_S)t_F}(\gamma_a - \gamma_i) \quad (2-35)$$

E_S : 基板のヤング率

ν_S : 基板のポアソン比

t_S : 基板の厚さ

t_F : 薄膜の厚さ

で求めることができる[B20].

まず、種々の熱膨張係数をもつ基板に、磁性膜を成膜し、熱処理を行った後、基板の反りを測定する。これらの反り量と基板のヤング率やポアソン比を用いて残留応力を計算すると、図 2.6.3-2 に示すような関係が得られる。

次に、面内に形状異方性がない円形基板で、且つ熱膨張係数に異方性がある基板に磁性膜を成膜し同様な熱処理を行う。今、 x 方向の熱膨張係数 a_x 、 y 方向の熱膨張係数 a_y 、として、図 2.6.3-2 の傾きを G とすると、 x 方向と y 方向の応力差は

$$\Delta\sigma = G \cdot (a_y - a_x) \quad (2-36)$$

となる

(2) H_λ の求め方

磁歪以外の要因でも異方性は誘導されるので、単純に膜の異方性を測定して H_λ とすることは出来ない。多くの軟磁性薄膜は熱処理中の磁界によって、磁界誘導による異方性磁界 H_h を付与することができる。図 2.6.3-3 のように磁歪誘導による異方性磁界 H_λ の方向と、磁界誘導による異方性磁界 H_h の方向が角度 θ 傾いているとき、 H_h の方向を 0° とし、磁化方向が χ の時の、異方性エネルギーの合計は、

$$E = -\frac{1}{2} K_h \cos 2\chi - \frac{1}{2} K_\lambda \cos 2(\chi - \theta) \quad (2-37)$$

となる。ここで、 K_h 、 K_λ はそれぞれ

$$\begin{aligned}
K_h &= \frac{1}{2} H_h M_s \\
K_\lambda &= \frac{1}{2} H_\lambda M_s
\end{aligned}
\tag{2-38}$$

である。さらに、

$$\begin{aligned}
K &= \sqrt{K_h^2 + K_\lambda^2 + 2K_h K_\lambda \cos 2\theta} \\
\tan 2\phi &= -\frac{K_\lambda \sin 2\theta}{K_h + K_\lambda \cos 2\theta}
\end{aligned}
\tag{2-39}$$

と置けば、

$$E = -\frac{1}{2} K \cos 2(\chi - \phi)
\tag{2-40}$$

となる。これは、異方性エネルギー K 、容易軸 ϕ の一軸異方性に他ならない。

ここで、大きさが K_h と K_λ で、挟角が 2θ のベクトル合成を考えてみる。これらが合成されたベクトルは、上の式で定義された ϕ 及び K を用いて表現すると、方向が 2ϕ で、大きさが K と等しくなる。この幾何学的関係を用いることで、測定値 H_k 及び ϕ から、簡単に H_λ を求めることができる。特に、 $\theta = 45^\circ$ となるようにすれば、

$$H_\lambda = H_k \sin 2\phi
\tag{2-41}$$

の関係が得られ、測定値 H_k 及び ϕ を用いて直ちに、

$$\lambda = A \cdot H_k \sin 2\phi \quad \text{ここで } A = \frac{M_s}{3\Delta\sigma}
\tag{2-42}$$

と、磁歪 λ を求めることができる。熱膨張係数に異方性がある基板として、単結晶サファイヤの(1 $\bar{1}$ 02)面（以下 R 面と称す）を用いた(図 2.6.3-4 参照)。単結晶サファイヤの R 面では、面内の c 軸投影方向 $\langle 2\bar{2}01 \rangle$ （この方向を $+45^\circ$ とする）の熱膨張係数は、

70.1×10^{-7} であり、その直交方向 $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ (-45°) の熱膨張係数は、 76.4×10^{-7} である。ここで、 H_h が、 0° 方向になるように熱処理すれば、 $\lambda > 0$ の場合、 H_λ は $+45^\circ$ 方向、 $\lambda < 0$ 場合は、 -45° 方向で、合成された一軸異方性は、 $\lambda > 0$ の場合、 $0 \sim +45^\circ$ の範囲で、負の場合、 $0 \sim -45^\circ$ の範囲測定されることになる。 H_h が極力小さくなるように熱処理を行えば、 ϕ は $\pm 45^\circ$ 近くになり、測定精度を高めることができる。

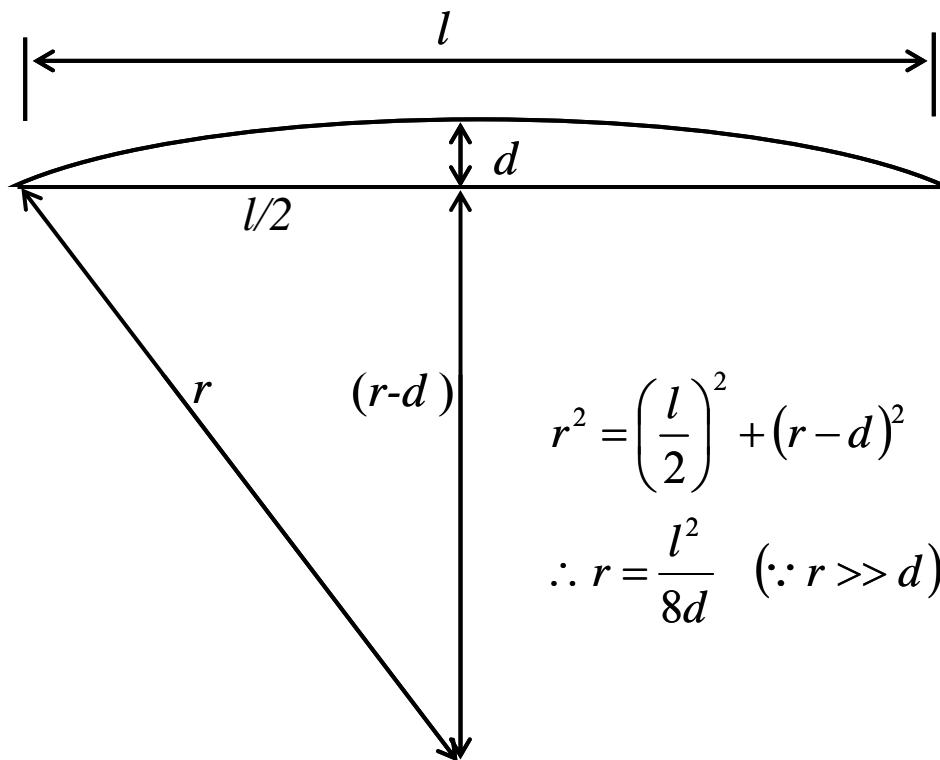


図 2.6.3-1 膜表面形状と曲率半径

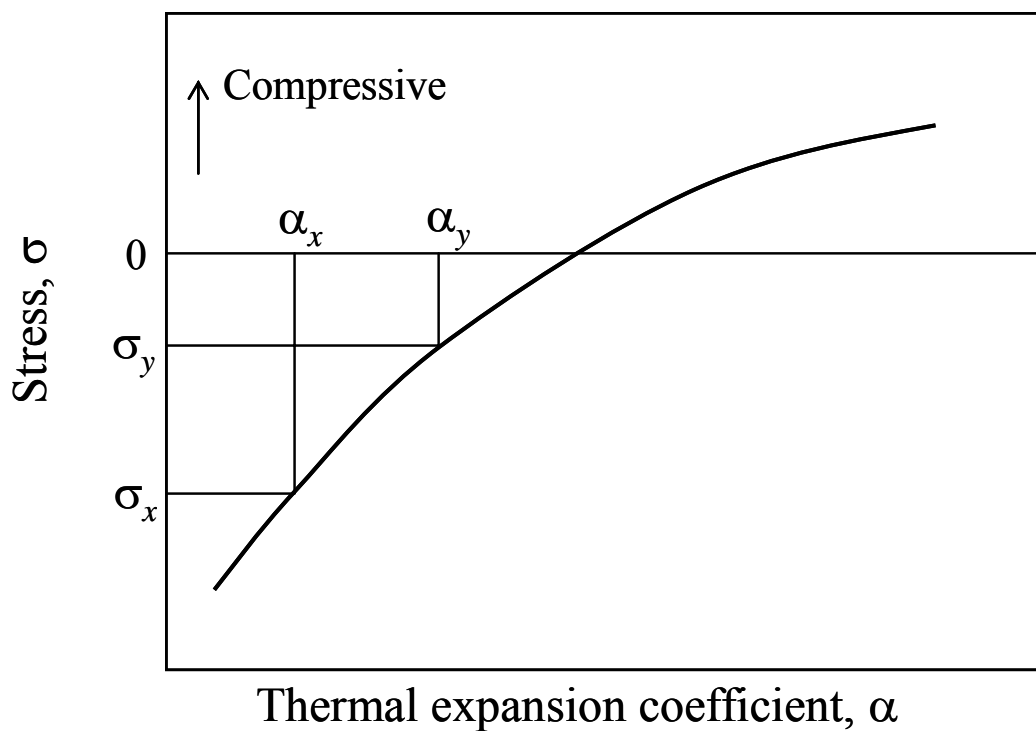


図 2.6.3-2 基板の熱膨張係数と熱処理後の残留応力の関係

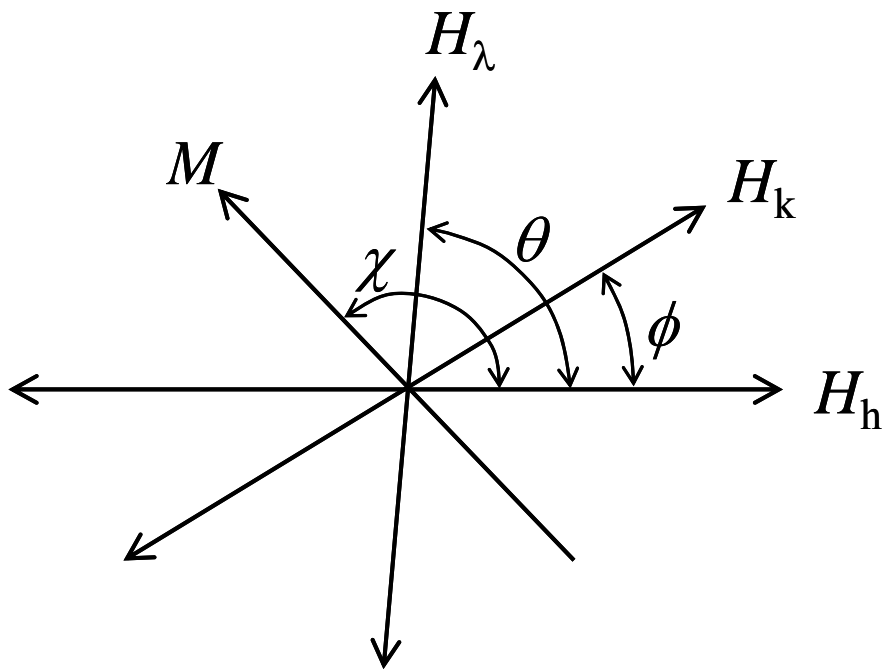


図 2.6.3-3 磁歪誘導による異方性と熱処理中の磁界誘導による異方性の合成

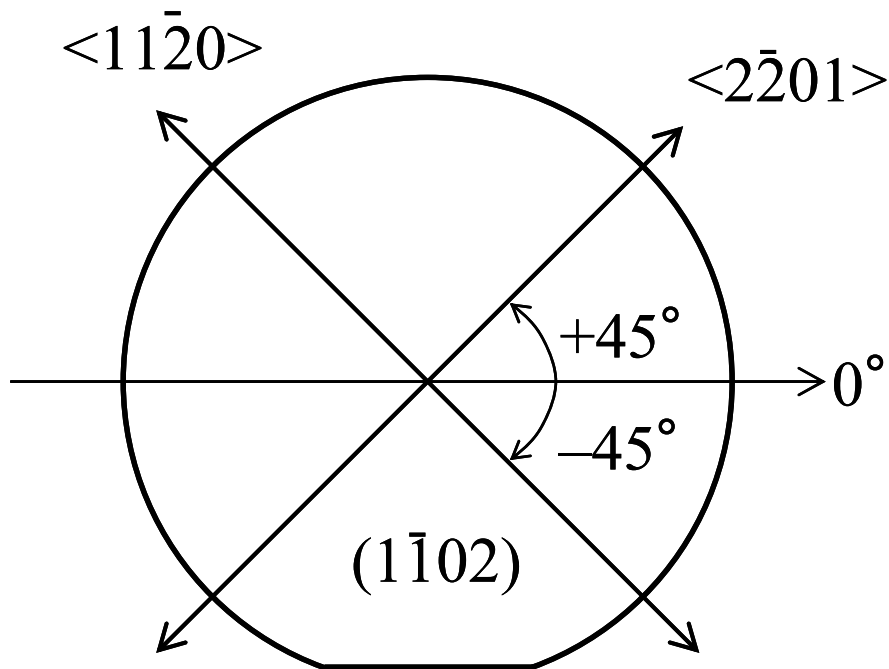


図 2.6.3-4 単結晶サファイヤ基板の R 面

§ 2.6.4 測定例

(1) 非晶質 CoNbZr (磁歪が既知の試料)

非晶質の $\text{Co}_{88.4}\text{Zr}_{8.0}\text{Zr}_{3.6}$ ($4\pi M_s = 10.5 \text{ kG}$) を各種熱膨張係数の基板に同一条件で成膜し、 350°C 熱処理したときの応力と基板の熱膨張係数の関係から、サファイヤ基板の R 面を用いた時の、 350°C 熱処理における、 $\Delta\sigma$ を求めたところ、

$$\Delta\sigma = 0.27 [\text{Gdyn/cm}^2]$$

であった。また、 H_h をなるべく小さくするため、熱処理中の印加磁界方向を、 0° と 90° 方向に適当に組み合わせて熱処理を行ったところ、

$$H_k = 0.4 [\text{Oe}]$$

$$\phi = 40^\circ$$

と測定され、

$$\lambda(\text{Co}_{88.4}\text{Nb}_{8.0}\text{Zr}_{3.6}) = 4.1 \times 10^{-7}$$

と求めた。同一条件で作製した薄膜を、光てこ法を用いて、バルクの Co のヤング率を前提にして測定したところ、 $4.1 \sim 4.5 \times 10^{-7}$ と測定された。

(2) Fe-Zr-N への Co 添加膜 (磁歪が未知の試料)

本章、第 4 節で議論した、Fe-Zr-N 軟磁性薄膜に Co を添加したときの磁歪の変化を測定した。まず、各種熱膨張係数の基板に、Fe-Zr-N 薄膜を成膜し、 550°C で熱処理を行い、サファイヤ基板の R 面に対する $\Delta\sigma$ を求めたところ、

$$\Delta\sigma = 1.05 [\text{Gdyn/cm}^2]$$

であった。非晶質 CoNbZr に比べて非常に大きな値となったことから、Fe-Zr-N 膜のヤング率は非晶質 CoNbZr よりも、相当に大きな値であると推定される。この値を用い

ば,

$$\lambda = 1.6 \times 10^{-7} H_k \sin 2\phi$$

となる. この式を用いて, 各サンプルの測定された H_k 及び ϕ から, Co 添加に伴う磁歪変化を定量したところ, 表 2.6.4-1 のように測定された.

表 2.6.4-1 Co 添加 Fe-Zr-N 薄膜の磁歪

Sample	λ
Fe _{83.3} Zr _{7.2} N _{9.5}	-4.2×10^{-7}
Fe _{81.0} Co _{1.3} Zr _{6.7} N _{11.0}	$\approx 0 \times 10^{-7}$
Fe _{80.1} Co _{2.8} Zr _{6.8} N _{10.3}	$+5.1 \times 10^{-7}$

§ 2.6.5 まとめ

ここで, 示した方法を用いれば, ヤング率が未知の薄膜に対して磁歪の測定が可能になる. 特に, 磁歪誘導による異方性と, 磁界誘導による異方性を 45° 傾けることによって, 両者の分離が幾何学的に容易に行える. ただし, 磁界誘導による異方性が, 磁歪誘導によつて異方性に比べて, あまり大きいと, 分解するときの精度が低下する. 熱処理中の磁界を適当に変化させ (0° と 90° 方向を用いる) 磁歪誘導による異方性を支配的にするとよい. また, 膜全体にかかる応力が, 膜に垂直に異方性磁界を誘導するような場合, 面内での異方性が測定できず, 結果が得られないことがある. しかし, 適した基板を選択し, 適当な熱処理を行うことによって, 薄膜のヤング率や, 膜厚に依存しないで簡便に磁歪定数を測定することができる. また, 測定中の振動などの外的動乱を受けにくいことも, 本手法の大きな特徴といえる.

第7節 結言

本章では、高飽和磁束密度、高耐熱性の軟磁性薄膜材料を開発するために、2つの方法について、検討した。

最初の方法は、薄膜であることの特徴を利用し、立方晶からなるFeの配向を制御することで、結晶磁気異方性の影響を抑え、純鉄の飽和磁束密度に近い組成で、軟磁気特性を得ることの可能性について、詳細な計算を行った。その結果、 $\langle 111 \rangle$ 方向に配向させることで、保磁力は著しく低下し、優れた軟磁性を得られる可能性があることを示した。

次の方法も、Feを主成分としつつ、結晶磁気異方性の影響を結晶粒の微細化によって、低減し、軟磁性を得る、実験的試みである。この場合も、最初の方法と同様、磁歪のみゼロ近傍に制御できれば、軟磁性が得られることになる。ここでは、鉄を主成分としつつ、Zrなどを含む組成系で非晶質膜を形成し、熱処理によって、微細な結晶粒を析出させる方法を試みた。この方法では、ランダムに配向した微結晶が、磁氣的に交換結合で束縛しあうことによって、結晶磁気異方性の影響がマクロに現れなくすることで、軟磁性が実現すると考えられる。この考えに基づき、Fe-X-N(X=Zr, Hf, Ta, Nb)の系で優れた軟磁性を示す組成域が存在することを示した。また、実用的観点から、Fe-Zr-Nについて、熱処理に伴う組成や磁性の変化について詳細に調べた。その結果、膜中のbcc-Fe中に固溶したNが誘導異方性磁界の起源である可能性が高いことを示すことが出来た。これらの膜は、従来から利用されているパーマロイやセンダストの飽和磁束密度(いずれも10 kG程度)に比べて、十分に高い飽和磁束密度(～15 kG)を有している、また、Co系アモルファス(～13kG)では得られない熱的安定性も有している。さらに、ビッカース硬度 H_v も1000を超えるなど、摺動に伴う耐摩耗性についても、高いことが期待できる膜である。

また、窒素系以外の組成系として、硼素系での微結晶軟磁性出現についても調査した、Fe-Zr-Bからなる三元系では、期待したような、軟磁性を得ることは出来なかったが、これに第四元素として、数%のCo, Ni, Cr, Vなどを添加すると負の磁歪がゼロ近傍になり、保磁力の低下と、透磁率の著しい向上を確認することができた。

次に、これらの軟磁性薄膜開発の過程で必須な磁歪測定法を開発した。従来から行われている薄膜の磁歪測定法は、磁化に伴う基板の変形を測定し、その変形量から磁歪を定量する方法であり、膜のヤング率が、事前に分かっていることが必要であった。ここ

で実現したような、結晶粒界面に硬い窒化物や硼化物を有する微結晶薄膜のような膜では、バルクの鉄とは異なったヤング率となることが想定されるため、別途、薄膜のヤング率を測定する必要がある。そこで、熱膨張係数に異方性がある単結晶基板を用いて、磁歪による異方性を誘導し、その大きさから磁歪を定量する方法を開発した。これによって、膜のヤング率が未知な薄膜に対しても磁歪定量が可能になった。

第3章 高記録密度薄層塗布型磁気媒体

第1節 緒言

本章では、磁気記録を用いた情報ストレージシステムの中でも、特に、単位体積あたりの情報量を高めることが可能で、また、素材コスト、製造コストが安価で、ビット単価での優位性が高い塗布型磁気テープ媒体について、さらに記録密度を飛躍的に高め、一層の高容量化、低ビットコスト化を図ることを目的としている。そのため、下記について検討する。

- ① 塗布型メタル媒体の、薄層化による電磁変換特性への効果をカーリングモデルによるシミュレーションを用いて明らかにすること。
- ② Barium-ferrite 粒子を用いた塗布型媒体において、記録容量を極限まで高めるために、表面性設計、磁性粒子の配向制御、磁性粒子のサイズや異方性分散、信号処理方式などについてシミュレーション及び実験により論じ、これらを最適化することで、高密度磁気テープを開発すること、及び、更なる高密度化の為の指針を明確にすること。

第2節 背景

メタルテープの出現は、媒体の性能を著しく高めた。それまで、利用されていた磁性粒子(Co 被着酸化鉄)の保磁力は、数百エルステッドであったが、メタル磁性体によって1500 Oe 以上になり、記録密度は急激に高まった。アナログ記録の例ではあるが、どちらも2時間録画可能なVHSカセット(酸化鉄)と8ミリカセット(メタル)の大きさの違いを見れば、その記録密度の違いは歴然としている。VHSのトラック幅58 μm に対して8ミリは20 μm 、白ピーク波長はVHSの約1.3 μm に対して、8ミリは0.7 μm を実現し、その結果、カセットサイズは、ほぼ1/5になった。2010年に発売されたLTO-5はメタル磁性体を用いて、小さなカートリッジ(110 mm×28 mm×114 mm)1本に1.5 TBのデジタルデータの記録が可能である。この情報量(1.5 TB)は、17 Mbpsの地上波デジタルハイビジョン放送をそのまま録画しても、約200時間分の放送が録画できる容量である。この高記録密度を実現する上で重要な技術は、記録の最小単位を決定する

磁性粒子の微細化と高保磁力化，ヘッドとテープ間のスペーシングを小さくしつつ安定した走行を実現するヘッドメディアインターフェース技術，シャープな磁界での記録を実現する記録ヘッド技術，高感度な再生出力を達成する再生ヘッド(磁気抵抗効果素子ヘッド)技術などと共に，薄層を安定して塗布する薄層塗布技術が重要な役割を果たしている．本章の第3節では，塗布型メタルテープにおける薄層化の効果について，実測及びシミュレーションを用いて議論する．第4節では，メタルテープを凌駕するバリウムフェライトテープについて詳細な議論を行い，超高記録密度の実証と，さらなる高記録密度実現の可能性を明らかにする．

第3節 薄層塗布型メタル媒体の記録再生特性

§ 3.3.1 はじめに

サブミクロンオーダーの磁気記録層で構成された塗布型媒体が実用化され、その優れた短波長特性が報告されている[C1]. これは、同時重層塗布によって実現されたもの[C2]で、その平滑性と摺動性、耐久性の両立は、従来困難と思われていた領域を、下層に潤滑剤供給源としての機能を付与することによって実現したものである[C3]. この薄層塗布型媒体の可能性を明らかにする目的で、磁気記録層の磁化回転にカーリングモデルを適用した二次元有限要素法シミュレーション[C4]を用いて、各種要因が記録再生特性に与える影響について調べた[C5]. まず、塗布厚のみを変えたサンプルによって実測値と計算結果を比較し、本シミュレーションの妥当性を示す. 次に個々の磁性粒子の持つ磁気エネルギーに依存する最大磁束密度 B_m や、保磁力 H_c , および磁気ヘッドの飽和磁束密度 B_s の影響についての計算結果を示し、再生出力向上には高 B_m 化が有効であること、および高 H_c 化に対応するためにはヘッドの高 B_s 化が不可欠なることを定量的に示す. 最後に同一磁性粒子を用いた場合の製造工程依存要因である配向およびその分散が与える影響についての計算結果を示す. このとき配向分布を面内における分布と垂直方向における分布を独立に変化させ、それぞれが面内媒体の再生出力に与える影響を議論する[C5].

§ 3.3.2 モデル

まず本計算に用いた磁性粒子の角度分散の方向を図 3.3.2-1 に示す. 走行方向を x 方向、トラック幅方向を y 方向、記録層の厚さ方向を z 方向として表示してある. 各磁性粒子の配向方向や異方性磁界はガウス分布しているものと仮定し、走行方向を中心に面内における配向角度分布の標準偏差を σ_ϕ , 厚さ方向の角度分布の標準偏差を σ_θ , 異方性磁界の絶対値分布の標準偏差を σ_{H_k} で示す. 磁気ヘッドは”I”型コアと”C”型コアが接続されたタイプで磁路全体が同一の飽和磁束密度 B_s とし、”C”コア側をトレーリングエッジとした. またギャップ長は $0.2 \mu\text{m}$, ギャップデブスは $15 \mu\text{m}$ とした. また、透磁率は等方的とし、ここでの計算はすべて 4000 としたものであるが、媒体間の差を見る上では、透磁率を 1000 に変えても結果に差はなかった. 記録電流はデジタル記録を想

定し，方形波とした．

Perpendicular direction

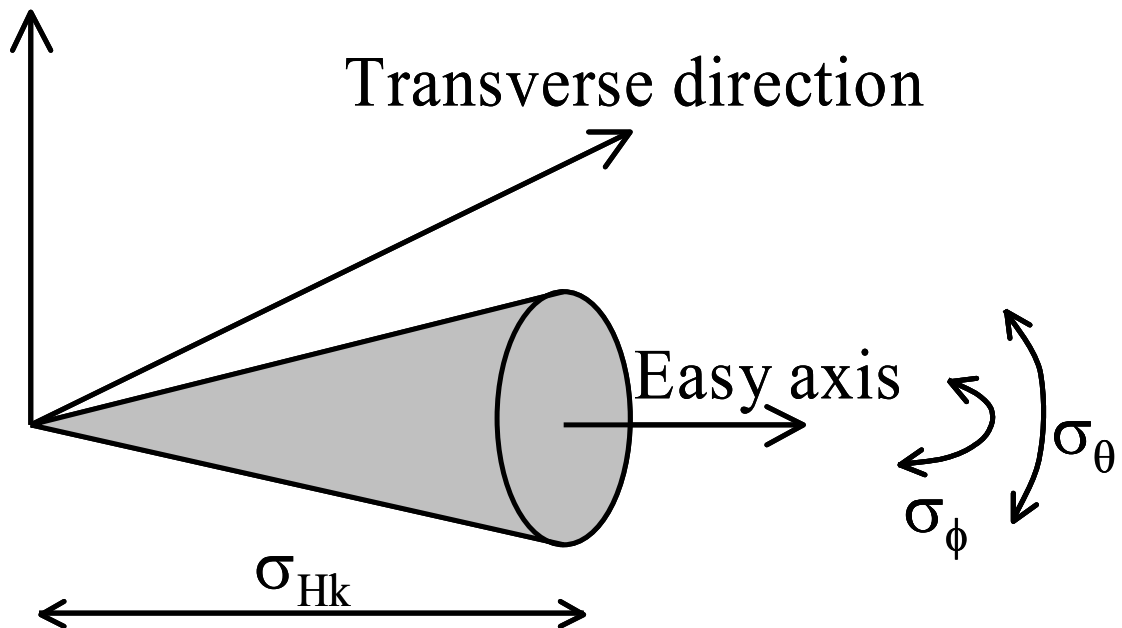


図 3.3.2-1 本節のシミュレーションで使われる座標

§ 3.3.3 結果

(1) シミュレーション結果の実測値との比較

図 3.3.3-1 に磁性層厚を $0.11 \mu\text{m}$, $0.22 \mu\text{m}$, $0.44 \mu\text{m}$ と変化させたサンプルの実測値と，磁性層厚 $0.1 \mu\text{m}$, $0.2 \mu\text{m}$, $0.4 \mu\text{m}$ の計算結果との比較を示す．実測値は磁性層厚 $0.44 \mu\text{m}$ のものを各周波数で 0 dB とし，また計算値は，磁性層厚 $0.4 \mu\text{m}$ のものを 0 dB としてプロットしたもので，横軸は実測した時の相対速度 10 m/s での周波数である．

実測には、トラック幅 $20\ \mu\text{m}$ ，ギャップ長 $0.2\ \mu\text{m}$ ，ギャップデプス $15\ \mu\text{m}$ の積層型 Fe-Ta-N 系合金ヘッドを用いた。計算で用いた媒体のパラメータは、表 3.3.3-1 のもので、これは媒体の長手、垂直、横方向の $B-H$ カーブの実測値を再現するように決定した。また磁気ヘッドの飽和磁束密度は $15\ \text{kG}$ とした。磁性層厚を薄くしていくと低周波（長波長）側で再生出力が低下し、高周波（短波長）側で増加するという実測結果を計算結果は良く再現しており、定量的にも $1\ \text{dB}$ 以内の差で一致している。

表 3.3.3-1 計算に用いた媒体パラメータ

Parameter	Symbol	Value
In-plane angular standard deviation	σ_{ϕ}	35°
Out-of-plane angular standard deviation	σ_{θ}	20°
Anisotropy filed	H_k	$4850\ \text{Oe}$
Anisotropy filed relative standard deviation	σ_{Hk}	$22\ \%$
Maximum flux density	B_m	$3000\ \text{G}$
Curling parameter	S	1.76

(2) 媒体の最大磁束密度および磁性層厚の影響

図 3.3.3-2 は、媒体の最大磁束密度 B_m を変化させた場合の、短波長 ($\lambda=0.5\ \mu\text{m}$) 再生出力を磁性層厚 $0.1\ \mu\text{m}$ ， $0.2\ \mu\text{m}$ ， $0.4\ \mu\text{m}$ の場合に対して計算した結果である。このとき、媒体の保磁力 H_c は $1750\ \text{Oe}$ 一定とし、ヘッドの飽和磁束密度 B_s は十分な記録ができるように $20\ \text{kG}$ とした。 B_m を 2 倍 ($3000-6000\ \text{G}$) にすると、 $3\sim 4\ \text{dB}$ の再生出力の改善が見込まれる。また B_m が $3000\ \text{G}$ 程度では波長 $0.5\ \mu\text{m}$ の場合には、磁性層厚にはほとんど依存せず、同一の再生出力を示すが B_m が 6000 を超えると磁性層厚を薄く

する効果が現れ、磁性層厚 $0.4 \mu\text{m}$ の媒体と $0.1 \mu\text{m}$ の媒体の比較では、 $0.1 \mu\text{m}$ の媒体が約 1 dB 高い再生出力を示した。これは、長手媒体では高 B_m 媒体ほど、磁化遷移位置での、反磁界の影響が大きく、磁性層厚を薄くすることで、この反磁界の影響を軽減できた結果と考えられる。

(3) 保磁力及びヘッドの飽和磁束密度の影響

図 3.3.3-3 は、媒体の最大磁束密度 B_m を 3000 G、磁性層厚 $0.2 \mu\text{m}$ 一定とした時の保磁力 H_c 依存性をヘッドの飽和磁束密度 B_s をパラメータとして示したものである。 B_s が 10 kG のヘッドでは H_c を大きくしていても再生出力の向上は、ほとんどなく、 H_c を 2500 Oe 以上にすると、むしろ低下してしまった。これはヘッドの記録能力の限界に対応したものと考えられる。 B_s が 15 kG の場合は、 $H_c=2500$ Oe 程度までは若干の上昇傾向を示すが、そこで、ほぼ頭打ちとなってしまった。実用上の限界と想定される B_s が 20 kG のヘッドを用いた場合のみ保磁力 3000 Oe まで再生出力の単調な増加を示した。ここでの計算は磁性粒子の配向角度分散などは一定としたもので、 H_c の増加は角形比 S_Q には影響せず $S_Q=0.83$ と一定の値になっている。すなわち、ここでの再生出力上昇はバルクでの残留磁束密度の変化に対応したものではなく、保磁力の上昇が、局所的な磁化状態に影響した結果である。

(4) 配向分布の影響

図 3.3.3-4 は面内の配向角度分布 σ_ϕ に対して、また図 3.3.3-5 は垂直方向の配向角度分布 σ_θ に対して、波長が $0.5 \mu\text{m}$ の時の、それぞれの、再生出力の計算結果を示したものである。ここで媒体の保磁力 H_c は 1750 Oe、最大磁束密度 B_m は 3000 G、磁性層厚は $0.2 \mu\text{m}$ 、ヘッドの飽和磁束密度 B_s は 15 kG とした。面内の配向角度分布を小さくしていく（媒体の角形比は向上する）と再生出力は大きくなるが、一方、垂直方向の配向角度分布は大きい（角形比が小さい）方が、再生出力が高くなった。また、面内の角度分布 σ_ϕ が小さいものほど垂直方向の角度分布の影響が顕著になっている。これらの結果は、垂直方向に分布を持たせることによって、遷移位置で反磁界が低下し、また、記録層表面に磁束が出やすくなったことが影響していると推定される。

(5) 斜め配向の効果

最後に斜め配向の効果について検討した。このとき配向角度分布は容易軸方向を中心軸とする回転対称として計算した。図 3.3.3-6 は配向角度分布の標準偏差を 10° , H_k を 4850 Oe, B_m を 3000 G, ヘッドの飽和磁束密度 B_s を 15 kG, 磁性層厚 $0.2 \mu\text{m}$ とし, 容易軸方向を面内から起こしていった時の長波長($\lambda=2.0 \mu\text{m}$)および, 短波長($\lambda=0.5 \mu\text{m}$)の再生出力と, オーバーライト消去率を計算したものである。ここでオーバーライト消去率は波長 $2.0 \mu\text{m}$ の信号を記録し, それを波長 $0.5 \mu\text{m}$ の信号で上書きしたときの $2.0 \mu\text{m}$ の信号成分の減衰率として求めた。ここでヘッドの飽和磁束密度 B_s は 15 kG とした。容易軸を面内から垂直方向に起こしてくるに従って最適記録起磁力 ORC (最大の再生出力を与える起磁力) が大きくなり, 配向角度 0° および 15° の時は, 0.19 Gb であった最適起磁力が, 30° 以上では 0.23 Gb となったため, オーバーライト消去率については起磁力, 0.19 Gb 及び 0.23 Gb 両方について計算し, グラフ中にはそれぞれの起磁力での値および, 各配向角の最適起磁力での値 (図中点線で表示) の両方を示した。短波長出力は配向角 45° で最大値をとり, また長波長出力は $0^\circ \sim 30^\circ$ では概ね一定で, 30° を超える配向では, 低下する傾向を示した。一方, オーバーライト消去率は斜め配向によって著しく改善され 45° に極小値を示した。

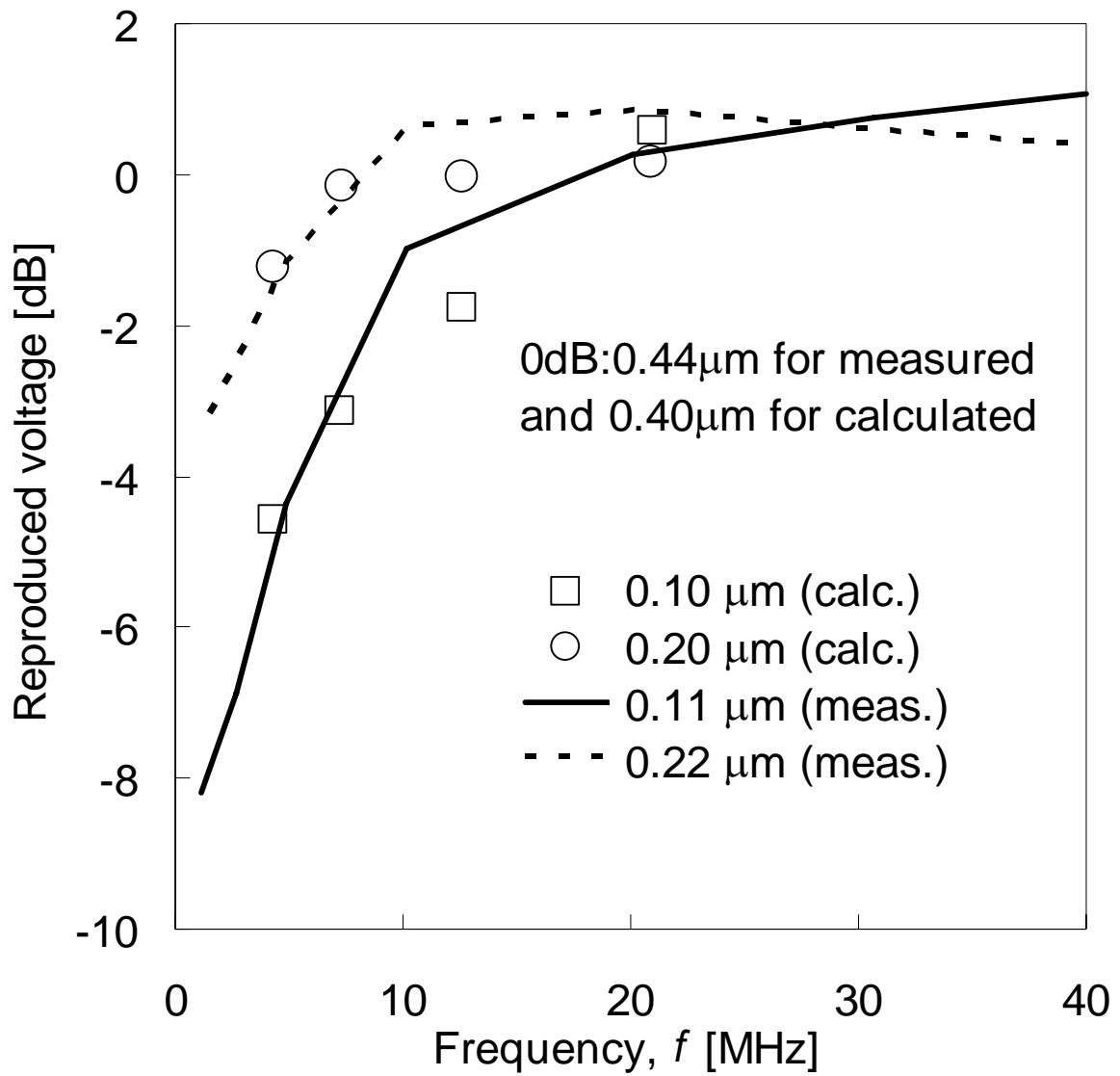


図 3.3.3-1 再生電圧の磁性層厚による違い[C5]

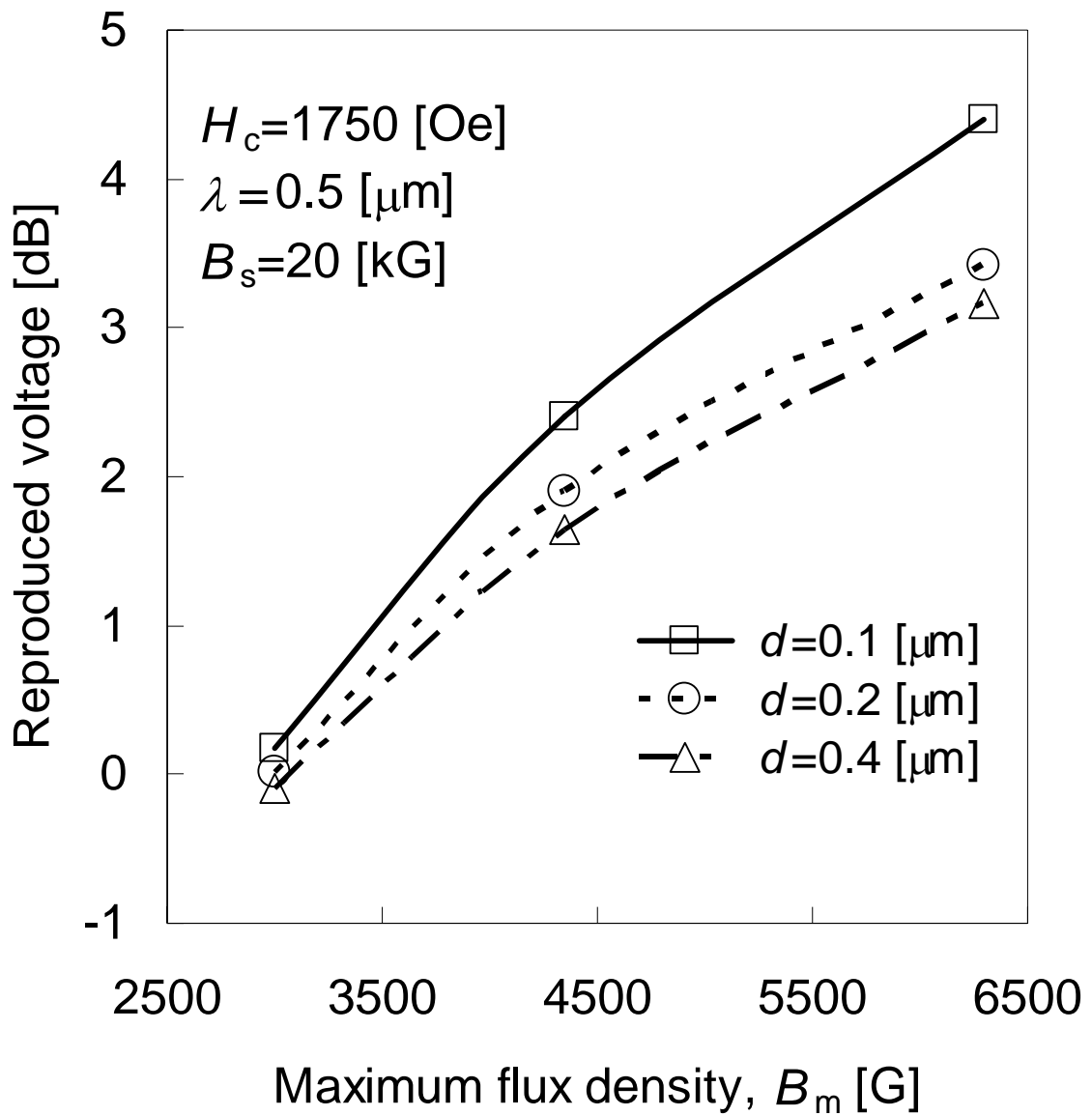


図 3.3.3-2 再生電圧の最大磁束密度(B_m)依存性[C5]

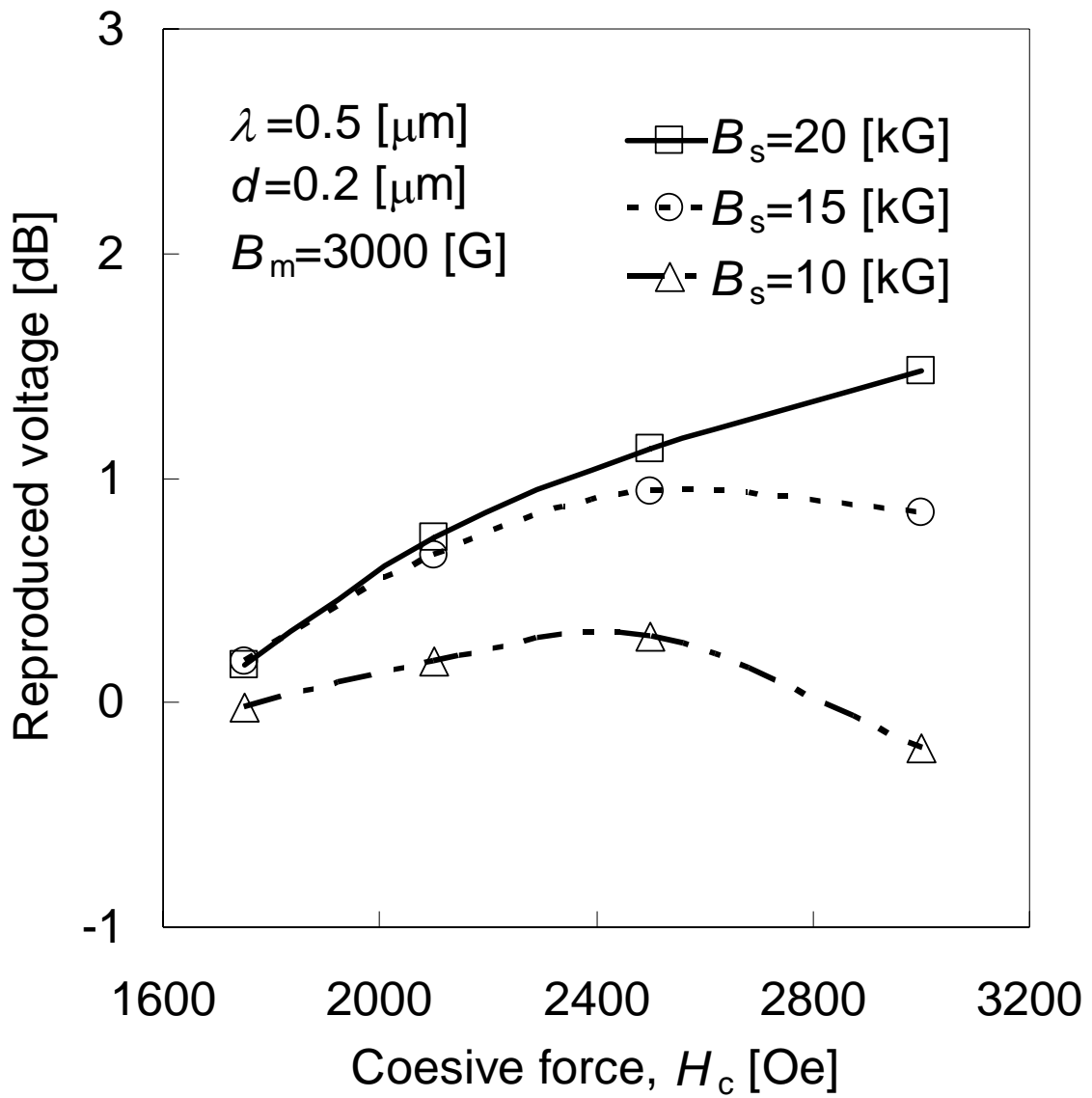


図 3.3.3-3 再生電圧の保磁力(H_c)依存性[C5]

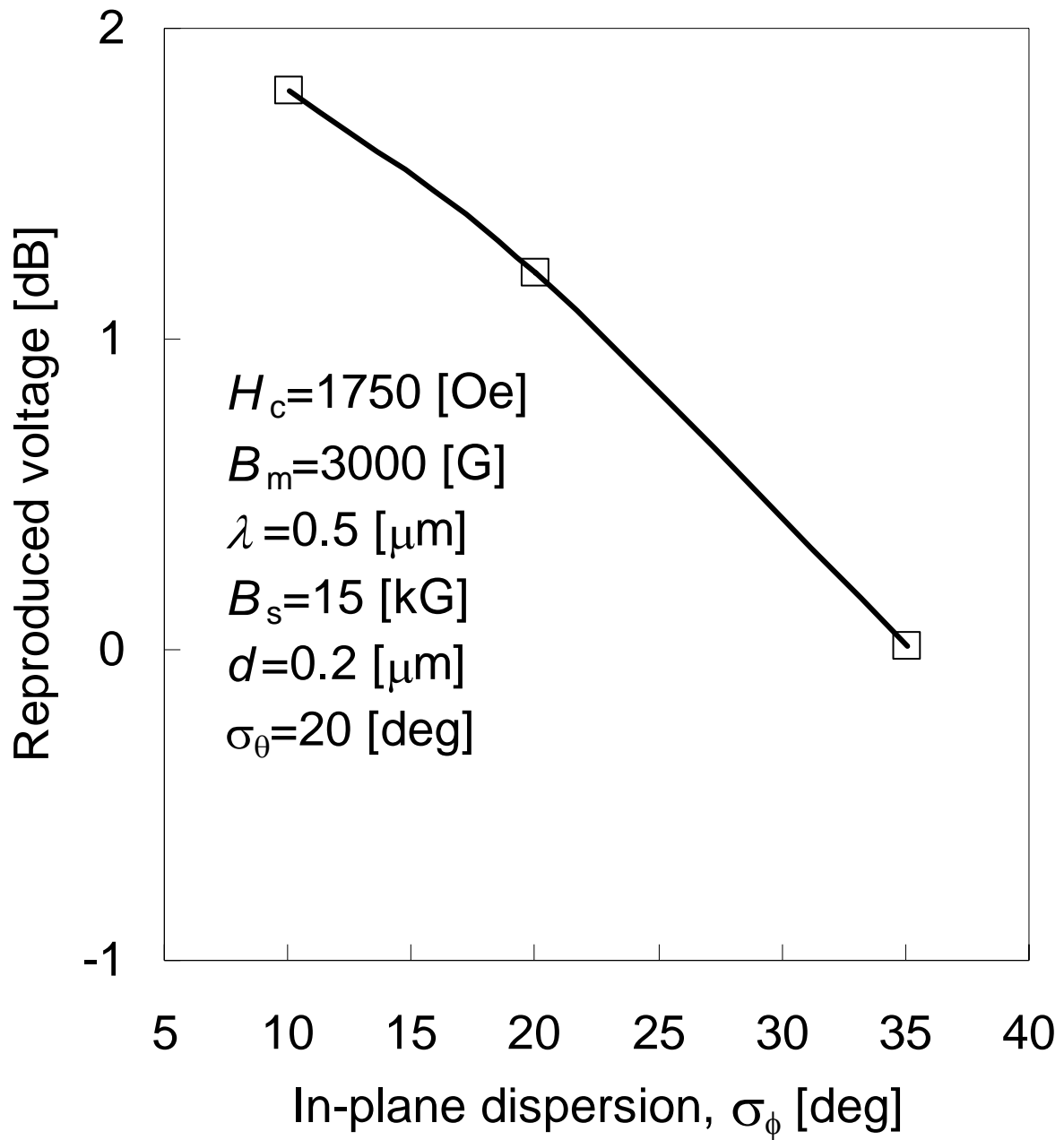


図 3.3.3-4 面内方向の配向分散と再生電圧の関係[C5]

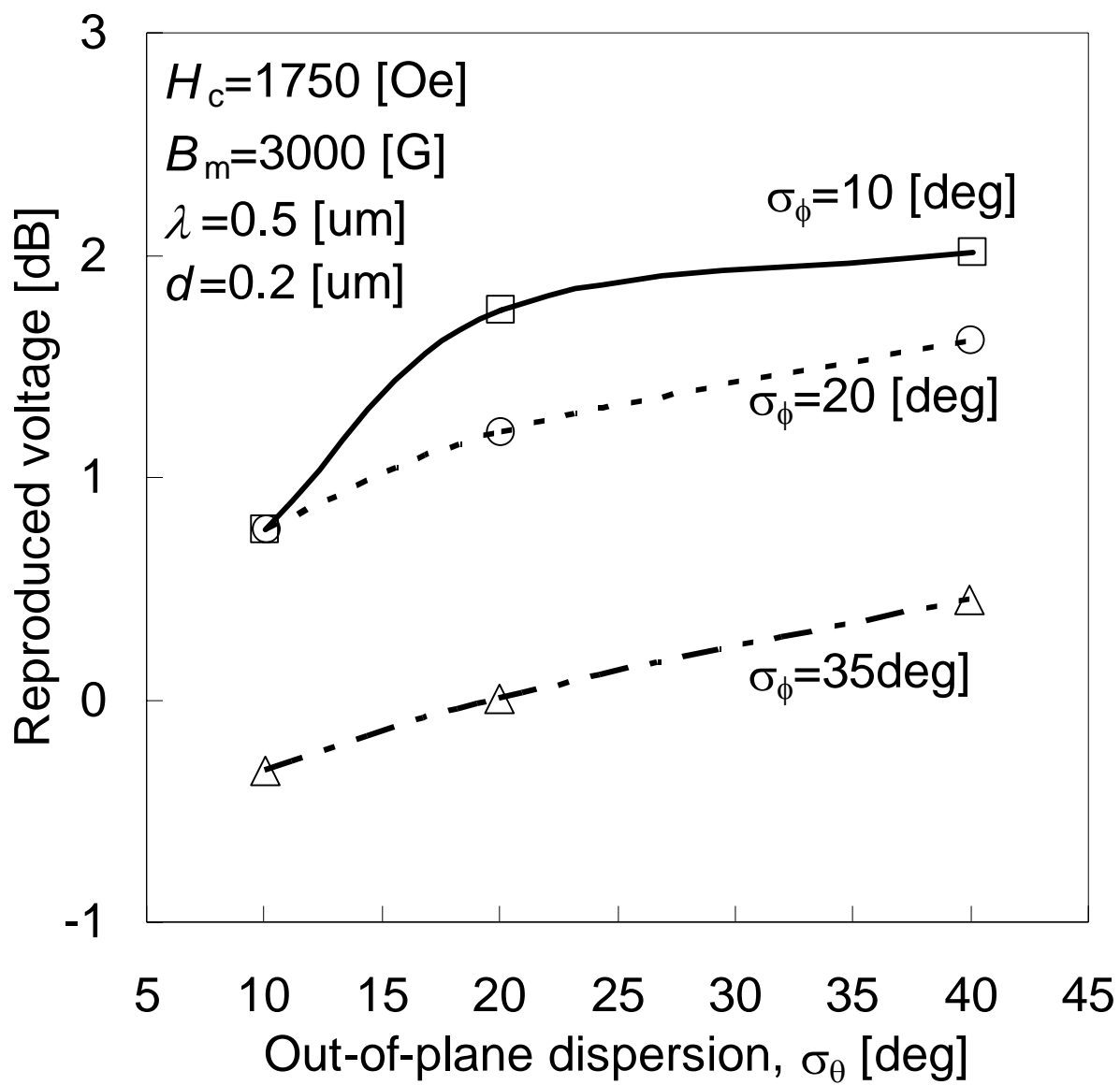


図 3.3.3-5 膜厚方向の配向分散と再生電圧の関係[C5]

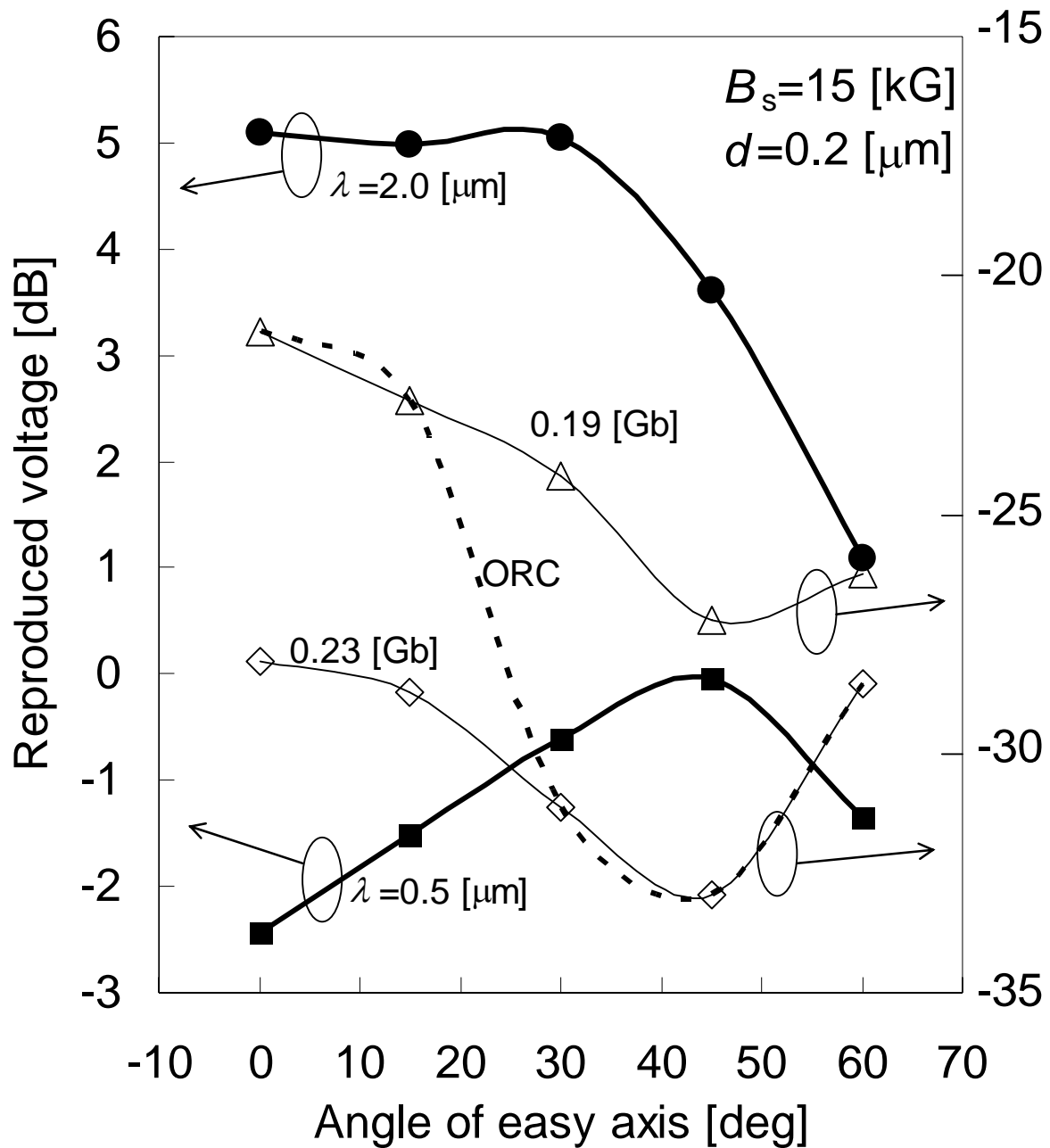


図 3.3.3-6 容易軸が膜厚方向に斜めに配向した時の再生電圧(左軸)及びオーバーライト特性(右軸)[C5]

§ 3.3.4 まとめ

本節では、カーリングモデルを用いた二次元有限要素法を薄層塗布型メタル媒体に適用し、記録再生に及ぼす各種要因について議論してきた。その結果以下のことが明らかになった。

- ① 短波長再生出力は H_c よりも B_m に大きく依存している。これは短波長記録においても比較的面内方向の減磁界が小さいことに由来していると考えられる。この原因は記録層の薄さが主要な要因と考えられる。
- ② 媒体の保磁力を 2500 以上にするためには、記録ヘッドの飽和磁束密度を 15 kG 以上にしないといけない。
- ③ 面内の配向角度分布は小さい（角形比が大きい）と再生出力は高くなるが、垂直方向の角度分布はむしろ大きい（角形比が小さい）方が再生出力は大きくなる。
- ④ 容易軸を傾けると短波長再生出力は向上し、 45° で極大を示す。またこのときオーバーライト消去率も極小を示す。長波長再生出力は 30° までは一定値を示すがこれ以上では急激に低下する。これは、すでに蒸着媒体を想定して行われたシミュレーション[C6]で報告されているものと同様に、記録磁界がトレーリング側で急峻になること、および、減磁界の小ささに起因している。また斜め配向媒体の優れたオーバーライト消去率は、斜め媒体とリングヘッドとの組み合わせによって記録層全体が磁化されやすくなる[C7]ためと推定される。

第4節 薄層塗布型バリウムフェライト媒体

§3.4.1 はじめに

リニアテープシステムは、年率 40 %、ほぼ 2 年で 2 倍のペースで容量増加を続けてきた。この記録密度向上は、主にメタル磁性体の微細化によって達成されている。しかし、近年、メタル磁性体を用いた媒体での記録密度上昇トレンドに鈍化の傾向が現れてきた。これは、メタル磁性体における保磁力の発現が、その針状形状に由来しており、微細化が進むにつれて磁気特性を維持することが困難になってきていることが一つの理由である。これを克服する手段としては結晶磁気異方性を、その保磁力の起源とする粒子の採用が考えられる。バリウムフェライトは、添加元素を調整することで、適切な結晶磁気異方性をもちうる粒子として古くから研究されている[C8]～[C10]。近年になり、フレキシブルメディアでも利用可能な GMR ヘッドが開発され、バリウムフェライト媒体との組み合わせでの高記録密度実現の可能性が精力的に研究され始めた[C11]～[C15]。この節では、リニアテープシステムにバリウムフェライト粒子を用いることによって、優れた長期保存性と飛躍的な高密度記録が実現できることを示す[C16]～[C21]。

§3.4.2 バリウムフェライト粒子の微粒子化の効果

磁気記録は、記録の最小単位である磁性粒子の微細化によって記録密度の向上を実現してきた。バリウムフェライトは酸化物であるため、メタル磁性体のように表皮に不動態皮膜を必要としない。従って、微細化の限界はメタル磁性体よりも小さいと考えられる。また、保磁力の発現が、メタルのような形状磁気異方性によるものではなく、結晶磁気異方性によっており、微細化に伴う形状の変化が大きく保磁力に影響しないことが期待できる。さらに、最大磁化はメタルよりも低い。この、高保磁力で低磁化という特徴は、媒体内の磁化遷移をシャープにする上で好都合であり、また、低ノイズ媒体を実現しやすいという特徴を持っている。一方、低磁化という特徴は、一粒子あたりの磁化遷移のためのエネルギーギャップ(異方性磁界と粒子体積の積 $K_0 V$)が必ずしも高くないことを意味しており、特に微粒子化した場合に熱による揺らぎを受けやすい(期待しない磁化反転が発生し、情報消失をおこしやすい)ことを意味している。また、詳細な機構は

必ずしも明確ではないが、実際に、組成を変えずに微粒子を進めていくと K_u が低下してしまうこともある。従って、バリウムフェライト粒子を微細化する場合は、熱的安定性を維持するため、磁気異方性エネルギー K_u をより高く維持可能な組成を選択することが重要になる。この項では、微粒子化しつつ、熱安定性を維持したバリウムフェライト粒子を用いた媒体開発について議論する[C19]。

(1) サンプル作製

バリウムフェライト($BaFe_{12}O_{19}$)は、微量の Fe を他の元素で置換することで、異方性エネルギー K_u を制御することが可能である[C8]。そこで、さまざまな粒子を作製し、これらの粒子を用いた磁気テープを作製した。表 3.4.2-1 に、この実験で用いたテープの層構成を示す。

表 3.4.2-1 実験用いたテープの層構成

磁性層厚 [nm]	80
下層 [μm]	1.5
ベース種	PET
ベース厚 [μm]	6.5
バックコート厚 [μm]	0.5

(2) 磁性体サンプルの測定

磁性粒子体積は、TEM 画像を用いて 900 個の粒子の直径と板厚を測定し、平均体積を求めた。ランダムに配向した粒子の中で、測定に用いた粒子は、側面が正確に計測可能な粒子のみである(斜めに配向しているものは採用しない)。磁気異方性エネルギー K_u は、十分に分散させた粒子を用いてトルクメータで測定した[C22]。

(3) テープ化サンプルの測定

テープ化したサンプルについては、磁気特性は VSM で、表面性は AFM を用いて $30\ \mu\text{m} \times 30\ \mu\text{m}$ の領域で測定した。熱安定性パラメータ $K_u V/k_B T$ は、VSM を用いた M. L. Watson の方法[C14]にならい、以下の方法で行った。

- ① テープ面内方向に 15 kG で磁化する。
- ② 上記と逆方向に磁界 H を印加した状態で残留磁化の変化を 6000 秒間測定する。
- ③ 横軸を時間の対数でとり、縦軸を上記の残留磁化でプロットし、ゼロをクロスする時間 t を求める。6000 秒以内にゼロをクロスしない場合は、直線で近似した外挿値を用いる。
- ④ 上記②及び③で求めた磁界 H と t の組み合わせは、その時間での保磁力であり、次式を満足するはずである[C23]。

$$H_c(t) = H_0 \left\{ 1 - \left(\frac{k_B T}{K_u V} \ln \frac{f_0 t}{\ln 2} \right)^n \right\}$$

- ⑤ ゼロをクロスする時間 t が 10^0 秒～ 10^9 秒(1 秒～約 30 年)の結果を用いて、上式でフィッティングを行い、 H_0 及び熱安定性パラメータ $K_u V/k_B T$ を求める。ここで、 f_0 は 1 GHz とし[C23]、 n は 0.77 とした[C24]。

(4) 記録再生特性及びエラーレート測定

記録再生実験は、磁気テープをループ状にして測定するループテストを用いた。測定に用いたループテストの写真を図 3.4.2-1 に示す。この装置で測定できるループの長さは 0.91 m であり、キャプスタンによって速度制御している。ヘッドの姿勢制御は、アジマス、ロール、ピッチの 3 角度が独立に制御可能で、テープのラップ角は、ヘッドの突き出し量を変えることで制御している。表 3.4.2-2 に、ここで用いた 2 つの磁気ヘッドの仕様を示す。記録ギャップ長、及びシールド間距離は、設計値を、トラック幅は SEM による測定値を示している。

Head A は、比較的トラック幅が広く、機器ノイズなどの影響を排除してメディア間の SNR の比較を正確に行う為のものである。一方、Head B は狭トラック幅のもので、高密度記録実現を確認するために利用している。どちらのヘッドも再生には GMR ヘッドを、記録にはリング型の薄膜インダクティブヘッドを利用し、高保磁力のバリウムフェライトにも十分な記録ができるように、飽和磁束密度は 18 kG の記録磁極を採用している。表中の再生トラック幅は、走査型電子顕微鏡(SEM)による実測値であるが、記録ヘッドのギャップ長や、GMR ヘッドのシールド間距離は、設計値であり、実測値ではない。

表 3.4.2-2 測定に用いた磁気ヘッドの仕様

	Head A	Head B
記録ヘッド		
ヘッドタイプ	薄膜ヘッド	薄膜ヘッド
ギャップ長 [μm]	0.17	0.17
飽和磁束密度 [kG]	18	18
再生ヘッド		
ヘッドタイプ	GMR	GMR
再生トラック幅 [μm]	0.9	0.2
シールド間距離 [μm]	0.12	0.16

SNR(広帯域 SNR : 以下 BB-SNR)の測定は、ヘッド A を用いて、テープ速度 4.1 m/sで行っている。信号は周期 2T(T はビットレート)の信号を、ノイズは 0~周期 T に相当する周波数までの積分値としている。

エラーレート測定は、ヘッド B を用いて走行速度 4.23 m/s, 32-state DDNPML channel で行った。測定の具体的手順[C25]~[C30]を、図 3.4.2-2 を用いて以下に説明する。

- ① 255bit の擬似ランダムパターン(生成多項式 $X^8+X^6+X^5+X^4+1$)を繰り返し記

録する.

- ② 記録した擬似ランダムパターンの再生波形を, デジタルオシロスコープを用いて取得し, 図 3.4.2-2 に示す”Read back samples”部に入力する.
- ③ Interpolative Timing Recovery 部で検出点に位相を合わせるように再サンプリングを行う.
- ④ 15 Tap の FIR を用いて PR4 ターゲットにイコライズする.
- ⑤ ノイズ予測フィルタ(3Tap の FIR $p(D) = p_1D + p_2D^2 + p_3D^3$)は 64 パターン(32 状態からの遷移の数)準備し, メトリクスが最小となるものを選択する.

即ち, GPR(Generalized partial response) チャネルはノイズ予測項 $[1-p(D)]$ をもつ PR4 であり, 伝達関数は

$$g(D) = (1 - D^2)[1 - p(D)]$$

である. ここで $p(D)$ は, 32-state の NPML 検出用多項式であり

$$p(D) = p_1D + p_2D^2 + p_3D^3$$

である[C26].

ここで, イコライザのタップ係数とノイズ予測フィルタの係数は, データの先頭部分を用いて, 誤差が最小となるように決定した.

(5) 結果

バリウムフェライト粒子の特性一覧を表 3.4.2-3 に示す. Particle A の体積が $2.2 \times 10^3 \text{ nm}^3$ で, Particle B は A とほぼ同じ体積であるが, Particle B の K_u は A に比べて大きくなっている. これは, 置換元素を調整して K_u を大きくした結果である.

一方, B, C, D, E, F と順次体積が小さくなり, Particle F で $1.5 \times 10^3 \text{ nm}^3$ になっている. また, K_u もこの順で小さくなっている. Particle B~F の組成はほぼ同一で, アスペクト比も全て同一(3.5)であり, サイズのみ異なる磁性体であることから, この K_u の差には, 体積差が K_u の測定値の差の要因となっていると考えられる. 体積差が

K_u に影響を与えるメカニズムの詳細は不明であるが、極表面部の磁性が結晶内部の磁性と異なり、体積の微細化に伴い、表面比率が増大していることが一つの要因と推定される。図 3.4.2-3 には Particle A(体積 $2.2 \times 10^3 \text{ nm}^3$) と Particle F(体積 $1.5 \times 10^3 \text{ nm}^3$) の TEM 画像を示す。

表 3.4.2-3 試作したバリウムフェライト粒子特性一覧[C19]

	Volume [10^3 nm^3]	H_c [Oe]	σ_s [emu/g]	K_u [10^5 erg/cc]
Particle A	2.2	2280	49	7.9
Particle B	2.1	3310	47	9.6
Particle C	2.0	2880	48	9.3
Particle D	1.9	2640	46	8.6
Particle E	1.6	2610	43	7.8
Particle F	1.5	2420	42	7.4

表 3.4.2-4 には、これらの Particle A~F で作製した Tape A~F の特性一覧を示す。磁気特性は長手方向での測定値である。Tape A から Tape B で(置換元素違いで)保磁力 H_c は大きくなり、B, C, D, E, F と粒子体積が小さくなるに従って保磁力 H_c は小さくなっている。また、全てのサンプルで角型比 $S_Q (=M_r/M_s)$ は、0.5 以下の値となっている。これは、配向が完全なランダムではなく、若干垂直方向に優先配向していることを意味している。つまり、製造時に、配向をさせるようなことをしなくても、板形状をした粒子の特性として、垂直方向に容易軸を示した結果と考えられる。一般に、粒子を微細化していくと、均一な分散が困難になり、粒子の凝集を起こしやすくなる。この場合、粒子の凝集ともない、テープ表面の平滑性が損なわれる。しかし、表 3.4.2-4 に示すように、これらのテープの表面性(R_a)は概ね同様(2.3 ± 0.2)であり、これらのテープは十分に分散されており、凝集の影響はほとんど無いと考えられる。

表 3.4.2-4 試作テープ特性一覧[C19]

	H_c (Oe)	M_{rt} (memu/ cm ²)	S_Q	$K_u V/k_B T$	Surface roughness R_a (nm)
Tape A (Particle A)	2040	0.33	0.37	87	2.1
Tape B (Particle B)	2650	0.29	0.34	100	2.5
Tape C (Particle C)	2460	0.44	0.42	93	2.3
Tape D (Particle D)	2270	0.40	0.41	84	2.3
Tape E (Particle E)	2100	0.28	0.32	71	2.2
Tape F (Particle F)	1980	0.29	0.33	69	2.2

図 3.4.2-4 は、Tape A, B, 及び F について、保磁力の測定時間依存性を示したものである。ここで、6000 (10^{3.78}) 秒以上の時間は、外挿値である。このカーブをフィッティングして各テープの熱安定性パラメータ $K_u V/k_B T$ を求めている。図 3.4.2-5 は横軸に粒子体積をとり、各テープの $K_u V/k_B T$ をプロットしたものである。白抜きのマーカで示した点(Tape A を含む 3 点)と、塗り潰しのマーカで示した点(Tape B~F)では、体積に対する熱揺らぎ定数の傾向に明確な違いが確認できる。この結果は、Tape A の組成系と Tape B~F の組成系の差であり、同一体積で比較した場合 Tape B~F の組成系が Tape A と比較して大きな熱揺らぎ定数を実現していることを示している。即ち、Tape F は体積 $1.5 \times 10^3 \text{ nm}^3$ まで微細化しているにも関わらず、 $K_u V/k_B T = 69$ を維持しており、Tape A 系(白抜きのマーカ)の従来組成では $1.7 \times 10^3 \text{ nm}^3$ 程度で 60 まで低下してしまっているのと比較して、大幅に熱安定性が向上していると推定される。また、Tape F で得られている $K_u V/k_B T = 69$ という値は、 $K_u V/k_B T > 60$ と言われている実用水準[C31]を十分上回っており、長期間にわたり安定して記録を保持することが期待できる。熱揺らぎ耐性の実技評価については § 3.4.5 にて詳細に議論する。

図 3.4.2-6 は、200 kfci の単一波を記録再生したときのテープノイズスペクトルを

Tape B と Tape F で比較したものである。微粒子化した Tape F が全域で Tape B のノイズレベルを下回っていることが分かる。また、図 3.4.2-7 は、粒子サイズと積分ノイズの関係をプロットしたものである。粒子体積の低減とノイズの低減に強い相関がある。

図 3.4.2-8 は、粒子体積と BB-SNR の関係をプロットしたものである。体積 $2.2 \times 10^3 \text{ nm}^3$ の Tape B の BB-SNR が 20dB であるのに対して、体積 $1.5 \times 10^3 \text{ nm}^3$ の Tape F は 21.6 dB であり、粒子体積微細化によって SNR が向上している。図中の実線は、理論線

$$SNR \propto 10 \log \left(\frac{1}{V} \right)$$

の関係を示すもので、よく一致していることが確認できる。

次に、Tape F で、狭トラックヘッド(Head B) を用いてエラーレートの記録密度依存性を確認した。結果を図 3.4.2-9 に示す。記録密度上昇とともにエラーレートは単調に増加していくが、線記録密度 360 kbpI でも、 1.5×10^{-4} を達成している。この値は、リニアテープシステムで用いられている直交リードソロモンを用いたエラー訂正を行えば十分実用的なエラーレートであり、Tape F は、再生トラック幅 $0.2 \mu\text{m}$ で 360 kbpI の線記録密度を達成したと言う事ができる。この時達成可能な記録密度は、トラックマージンをどれくらい必要とするかによって大きく異なった結果となるが、仮にトラックピッチをトラック幅の 3 倍[C13] (即ち両側に再生トラック幅と同じ幅のマージンを確保する) とすると、 15 Gbit/in^2 の記録密度を達成できたことになる。実際には、どれだけのトラックマージンを必要とするかは、テープとヘッドの摺動性にも大きく依存するため、走行系を含めたシステムとして評価する必要がある、詳細は § 3.4.8 にて議論する。

(6) まとめ

本項では、バリウムフェライト粒子を微細化した場合の性能向上について議論した。その結果、 $1.5 \times 10^3 \text{ nm}^3$ 程度まで磁性粒子の体積を小さくしても、熱安定性パラメータ $K_0 V / k_B T > 60$ を確保することが可能で、一定の仮定のもと、記録密度 15 Gbit/in^2 の可能性を示すことができた。

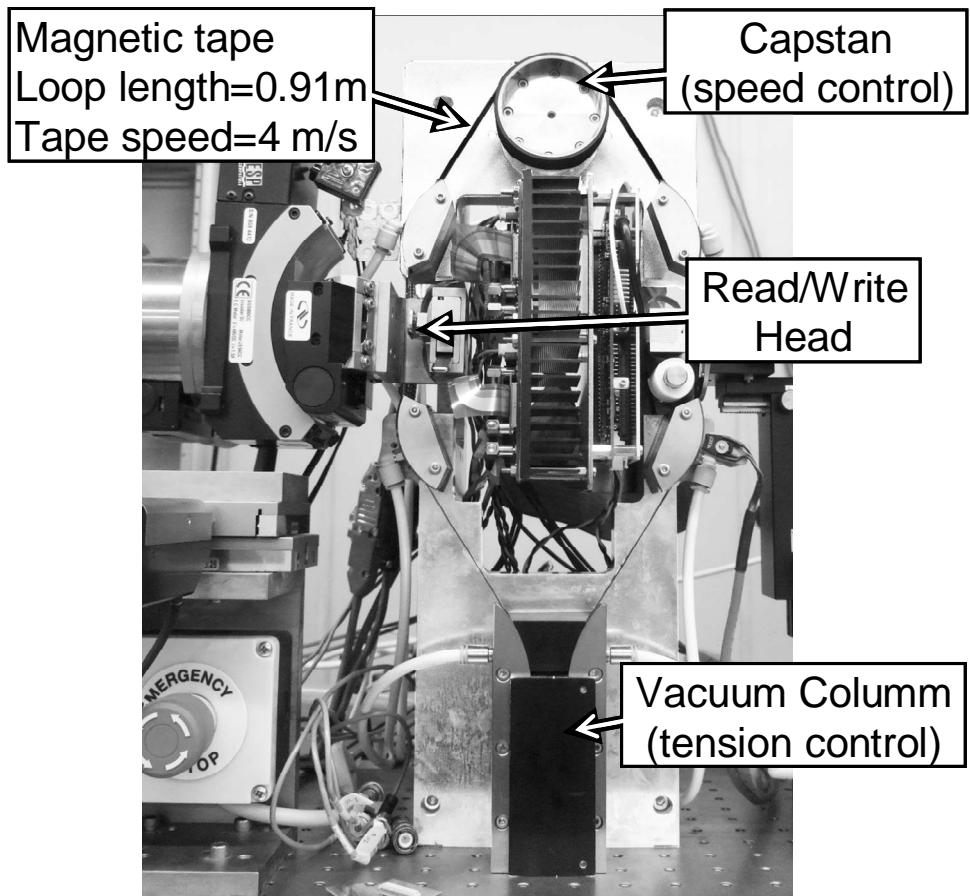


図 3.4.2-1 測定に用いたループテスタ

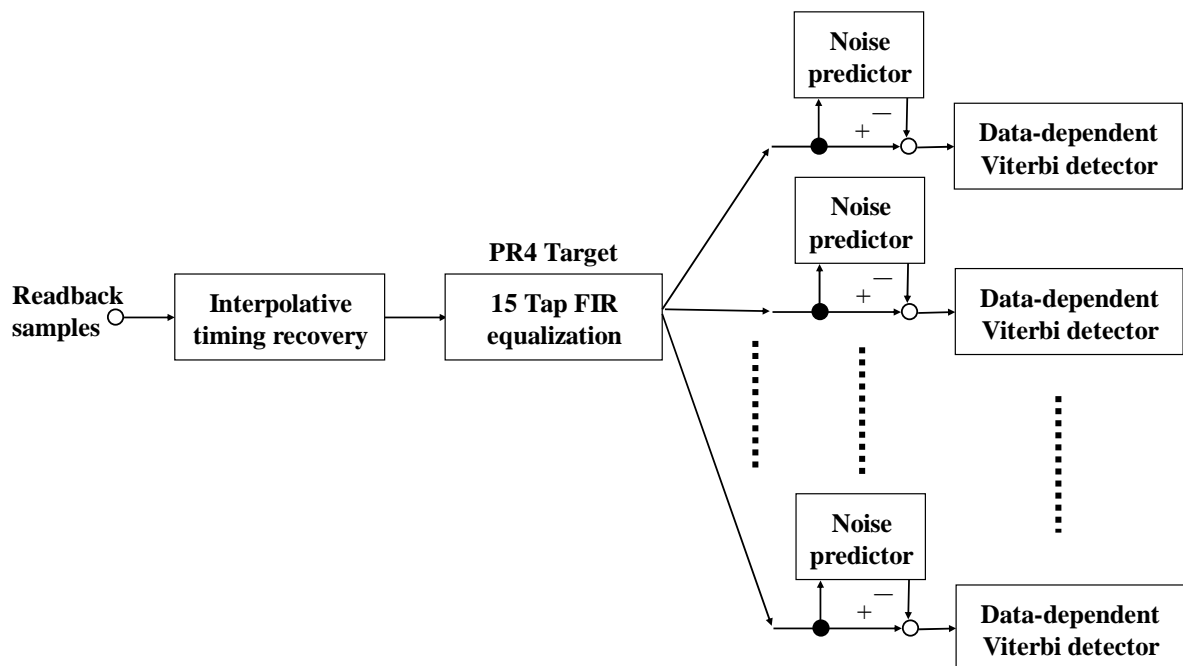


図 3.4.2-2 DD-NPML ブロックダイアグラム

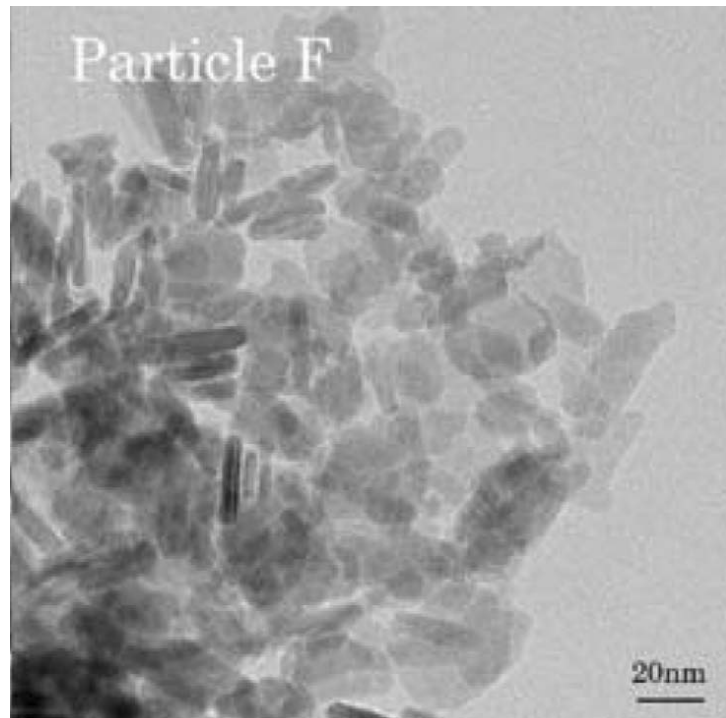
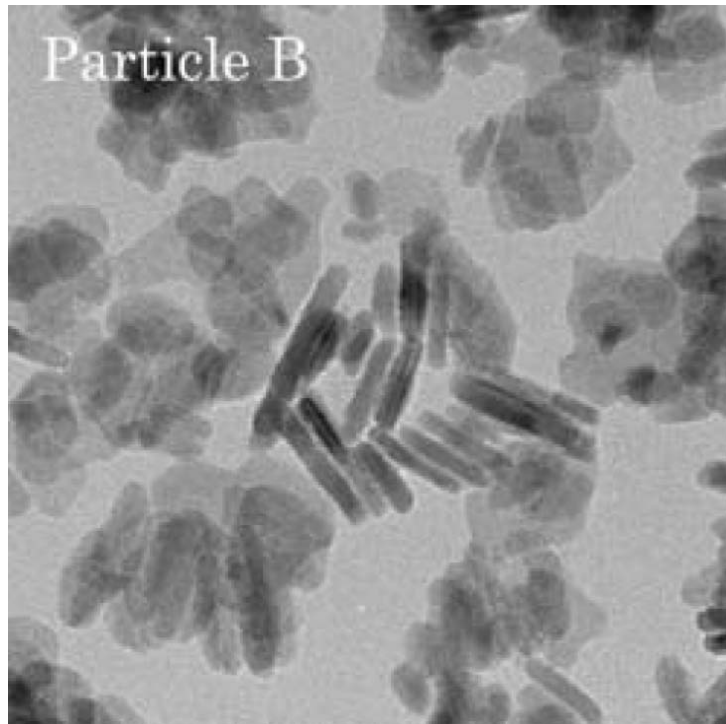


図 3.4.2-3 Particle A と Particle F の TEM 画像

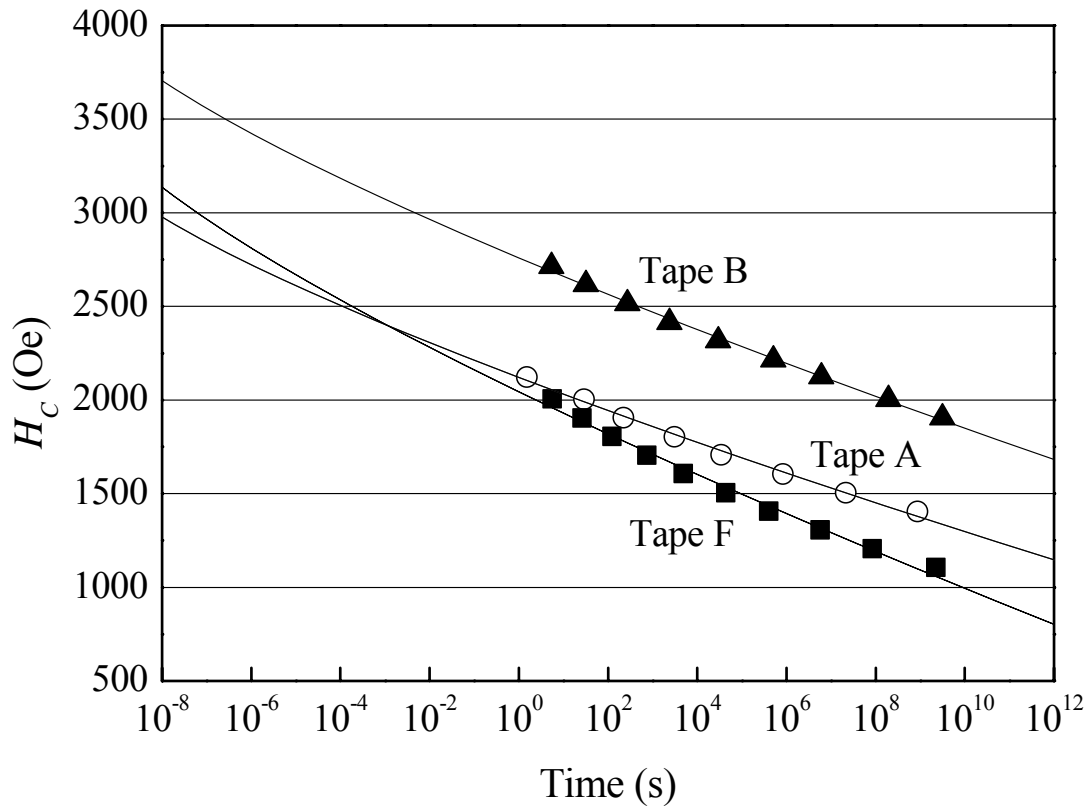


図 3.4.2-4 保磁力の測定時間依存性 [C19]

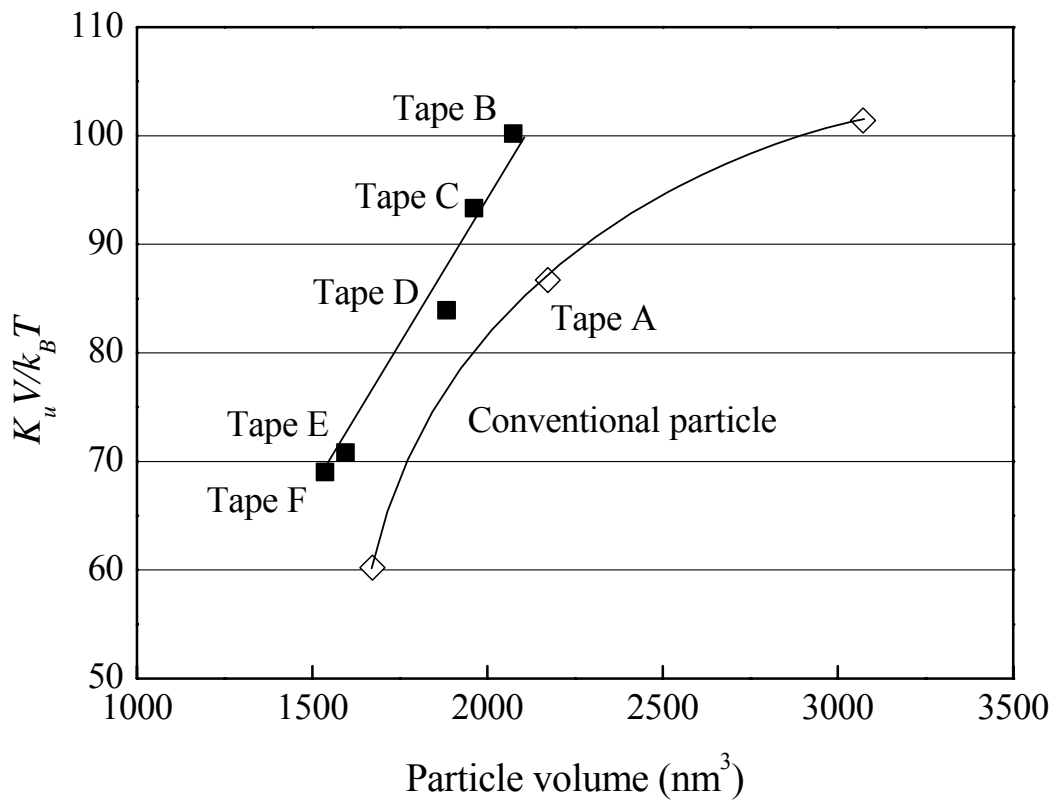


図 3.4.2-5 熱安定性パラメータ($K_u V / k_B T$)と粒子体積の関係 [C19]

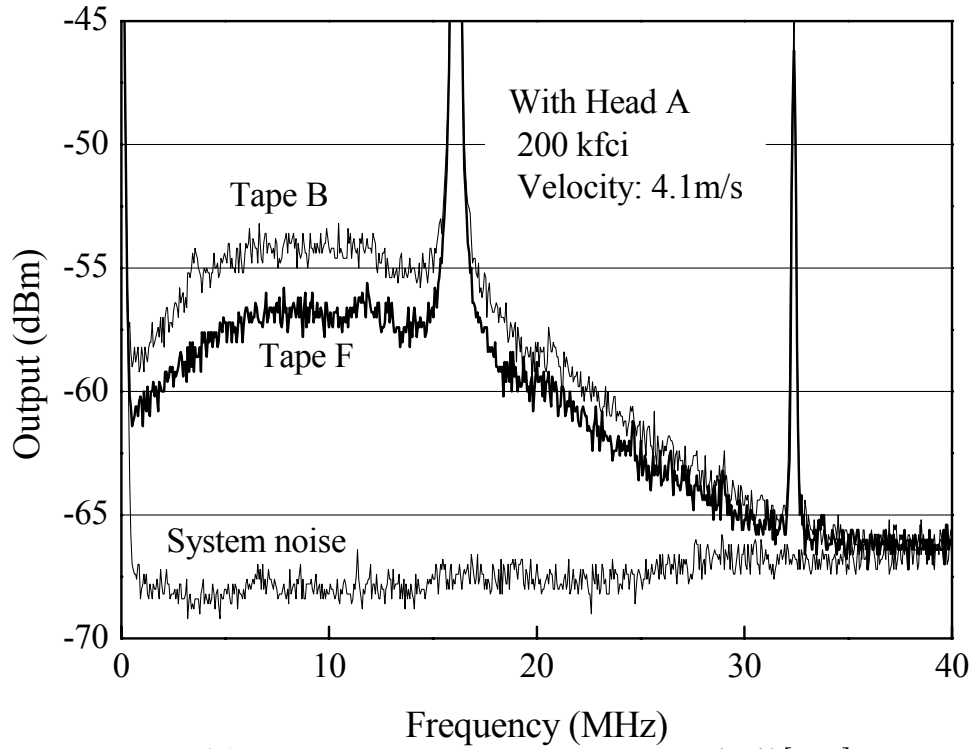


図 3.4.2-6 Tape B と Tape F のノイズ比較[C19]

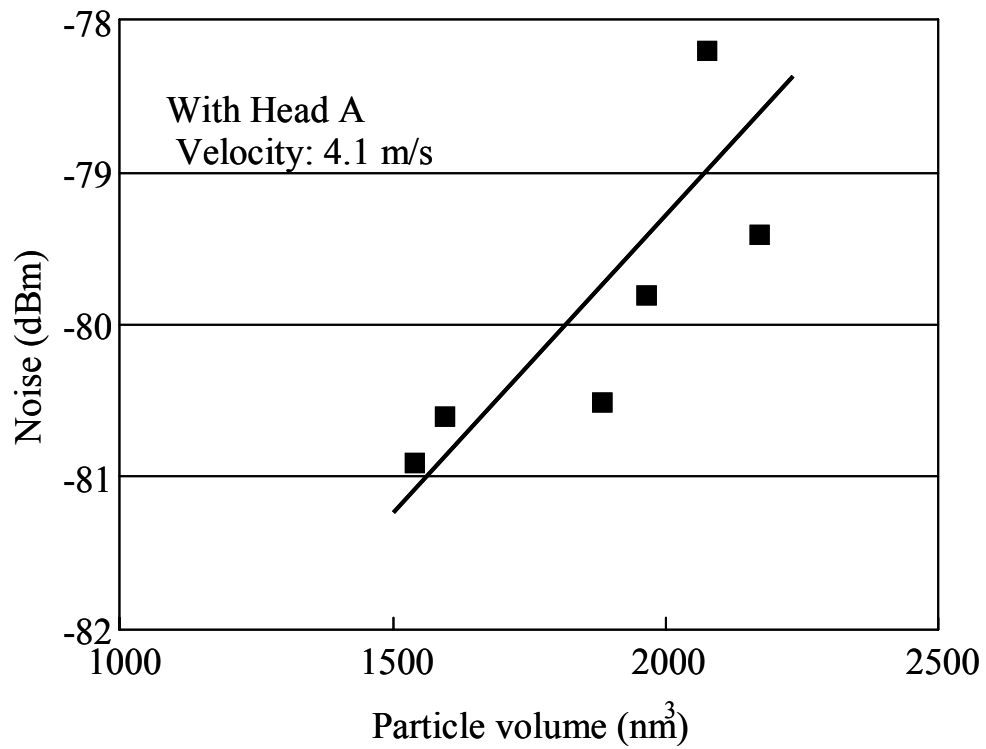


図 3.4.2-7 積分ノイズの粒子体積依存性 [C19]

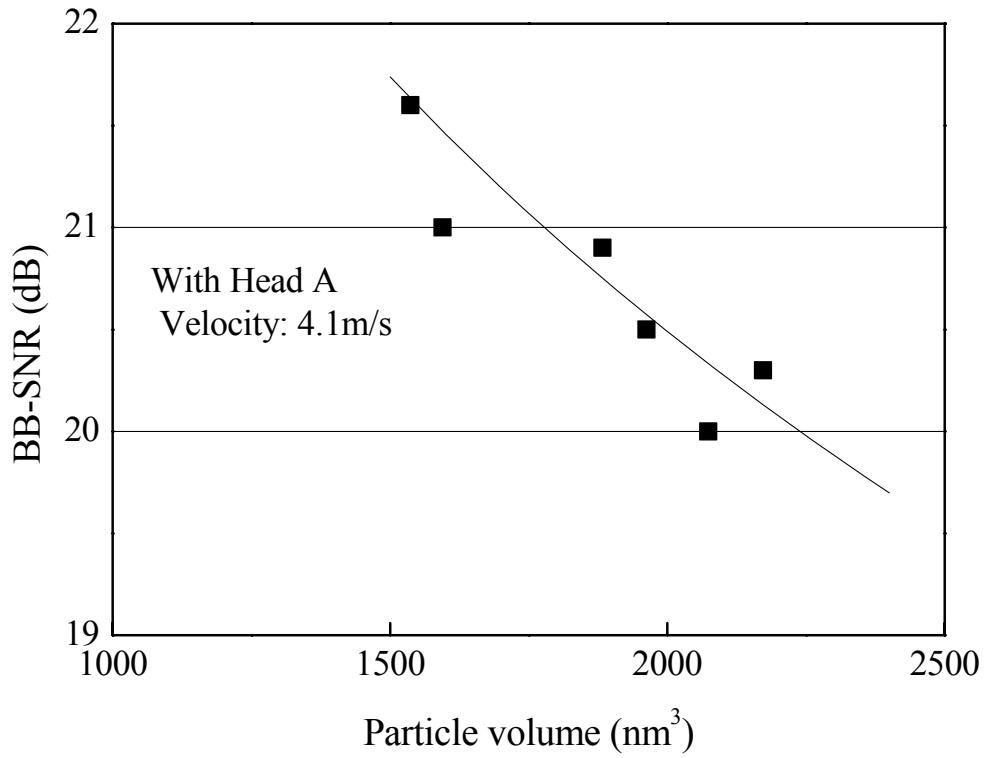


図 3.4.2-8 BB-SNR と磁性粒子体積の関係 [C19]

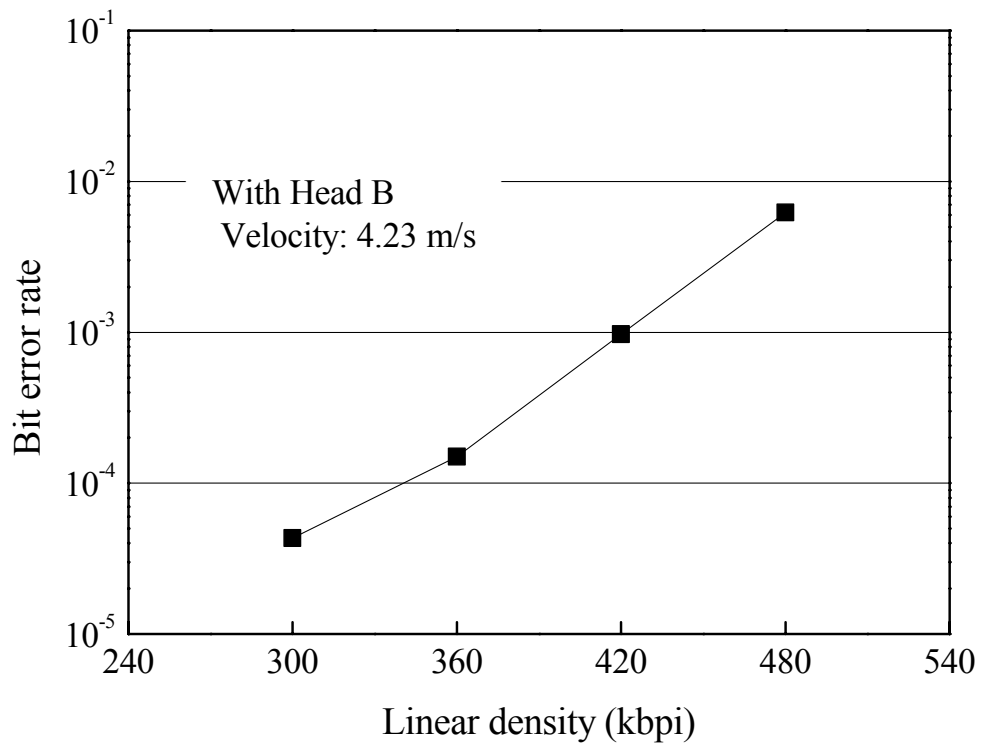


図 3.4.2-9 ビットエラーレートの記録密度依存性 [C19]

§ 3.4.3 容易軸配向と記録再生特性

前項 (§ 3.4.2) では、磁性粒子微細化について議論し 1500 nm³程度まで微細化しても必要な熱安定性を維持できる可能性を示した。本項では、容易軸配向の効果について議論する。バリウムフェライトは、その c 軸に容易軸をもつ六方晶であり、粒子形状が c 面からなる板状であることから、塗布した場合に c 軸が塗布面に垂直に配向しやすく、塗布型磁気テープでの垂直記録実現の可能性について古くから検討されてきている[C8]。一方、近年(2006 年以降)に検討されている微粒子を用いた塗布型バリウムフェライト媒体[C11]~[C15]は、いずれも必ずしも高い配向を実現できていない。微粒子は凝集しやすく、十分な分散工程がないと配向しないことが、この一因である。そこで、電磁変換特性に及ぼす配向の影響を明らかにすることを目的として、マイクロマグネティックスシミュレーションを用いて配向の効果を予測し、また、分散工程を強化することによって、垂直及び面内に配向したバリウムフェライトテープを作製し、その効果を検証した[C16]。シミュレーションには、市販の三次元シミュレータ ARM[C32]を用い、記録ヘッドは、Lindholm ヘッド磁界[C33]を想定した。再生出力は、シールド型 MR ヘッドの感度関数を差分法によって求めたものを利用して計算した。

(1) シミュレーションモデル

この節のシミュレーションに用いる座標系を図 3.4.3-1 に示す。テープの走行方向を x 軸、垂直方向を y 軸、トラック幅方向を z 軸としている。 θ は、各粒子の磁化容易軸が z 軸と成す角であり、 φ は、磁化容易軸方向の z 面への射影と x 軸が成す角である。長手媒体の場合、 θ の平均値 $\langle\theta\rangle$ は 90° であり、 φ の平均値 $\langle\varphi\rangle$ は 0° である。また、垂直媒体の場合は、 $\langle\theta\rangle=\langle\varphi\rangle=90^\circ$ となる。つまり、これらの平均値を変えることは、媒体の配向方向を変えることに相当し、これらの、ばらつきを変えることは、配向の程度、即ち、 $B-H$ ループの角型比を変えることになる。

図 3.4.3-2 にセル分割を示す。全てのセルは同一サイズの六角柱とし、一つのセルが一つの粒子を構成している。従って、粒子内の磁化回転は、一斉回転として扱っていることになる。また、セル間(粒子間)の交換相互作用はゼロとした。ここでは、充填率を 100% にしている。現実の媒体の充填率は 50% 程度であるので、この違いをセルの磁化量で調整している。即ち、実際のバリウムフェライト粒子の平均磁化 $\langle M_s \rangle$ は、270 emu/cm³ 程度であるが、ここでは、135 emu/cm³ として計算した。これにより、媒

体の最大磁束密度は同等となる．粒子の異方性磁界の平均値 $\langle H_k \rangle$ は 7000 Oe とし，飽和磁化及び異方性磁界の相対標準偏差は，ともに 30 %とした．

表 3.4.3-1 に示すように，配向方向と配向の程度を変えた 5 種のモデル(Model A, B, C, D, E) について計算した．これらのモデル間での差は， θ と φ の平均値($\langle \theta \rangle$ 及び $\langle \varphi \rangle$) と標準偏差($\sigma(\theta)$ 及び $\sigma(\varphi)$) である．Model A~E はその順番で，極限長手配向，長手配向，ランダム配向，垂直配向，極限垂直配向に対応している．表に示す SQ_L 及び SQ_P は，それぞれ，各モデルの長手及び垂直方向の角型比であり， $M-H$ ループシミュレーションによって得られた値である．但し， SQ_P は，垂直方向の反磁界係数を 4π として補正した後の値を示している．Model C は， φ は一様分布とし， θ は，正弦波形状の分布で与えることにより完全なランダム分布を実現している．

表 3.4.3-1 シミュレーションモデル一覧

Model	$\langle \theta \rangle$	$\sigma(\theta)$	$\sigma(\theta)$	$\sigma(\varphi)$	SQ_L	SQ_P
A	90	0	10	10	0.98	0.16
B	90	0	30	30	0.80	0.38
C	randomly distributed				0.54	0.54
D	90	90	30	30	0.34	0.79
E	90	90	10	10	0.14	0.97

図 3.4.3-3~7 に，各モデルの， θ 及び φ の分布(容易軸分布)とその投影図，また，長手及び垂直方向の $M-H$ ループの計算結果を示す．ここに示す Model A, B や Model D, E のように， θ 及び， φ の分布を標準分布にとると，厳密には，配向方向を軸とした回転対称になっているわけではない，しかし，投影図から明らかなように， $\sigma=30^\circ$ 程度までなら，概ね回転対象とみなすことができる．また，ここで示す $M-H$ ループは，反磁界の影響を含んだものである．その結果，完全なランダムに配向分布を持つ Model C の $M-H$ ループで，長手方向と垂直方向で異なるループとなっている．垂直方向の反磁界係数を 4π として，補正を行うと，Model C の垂直方向の $M-H$ ループは，長手方向と重なる．

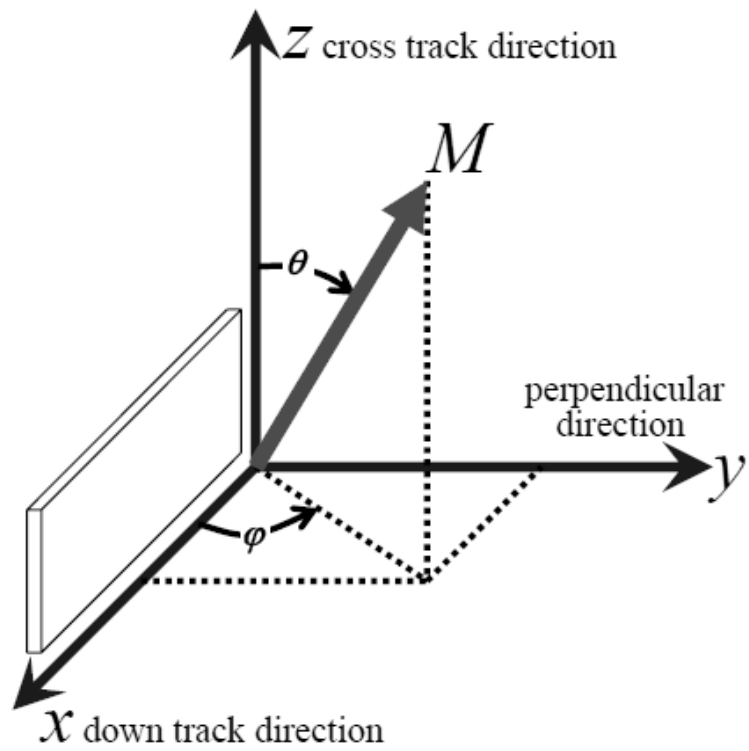


図 3.4.3-1 テープ方向と座標系

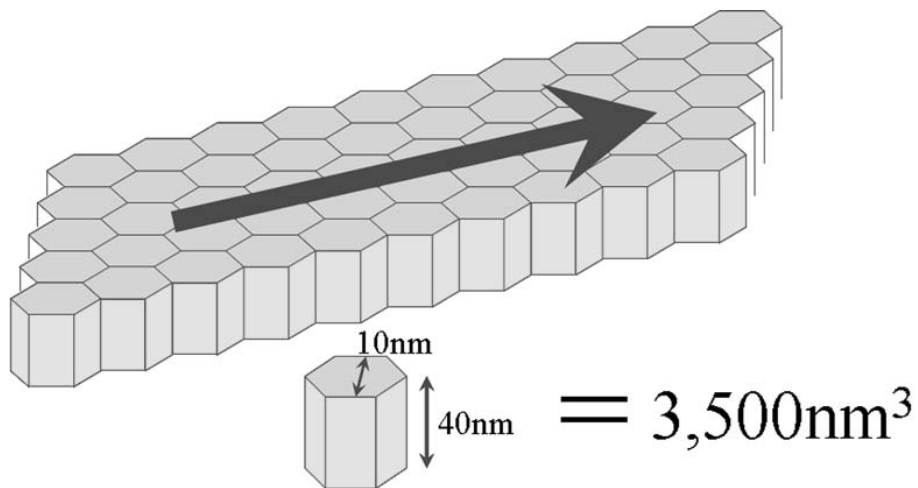


図 3.4.3-2 セル分割

Model A----強く長手方向に配向した媒体の場合

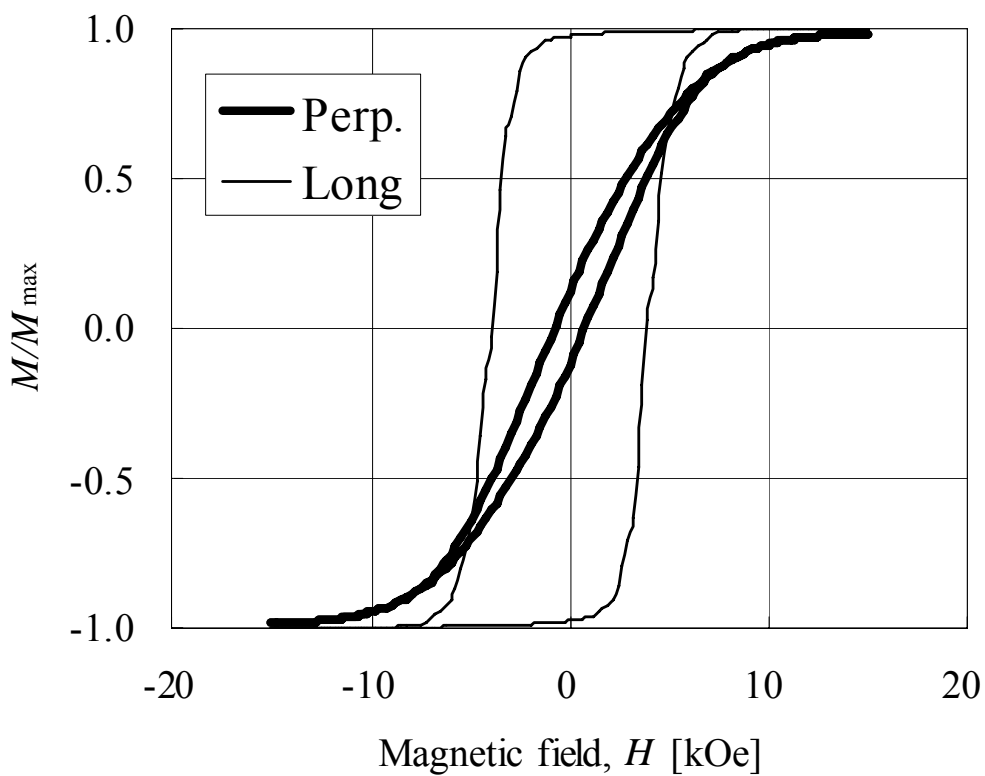
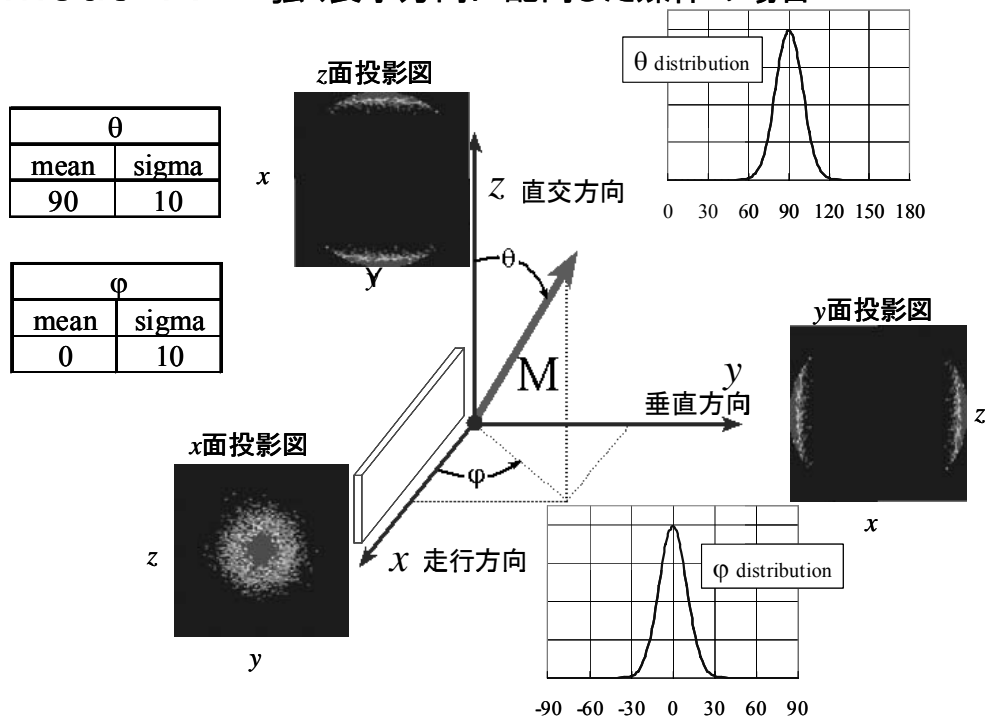


図 3.4.3-3 Model A の容易軸分布と M - H ループ

Model B-----長手方向に配向した媒体の場合

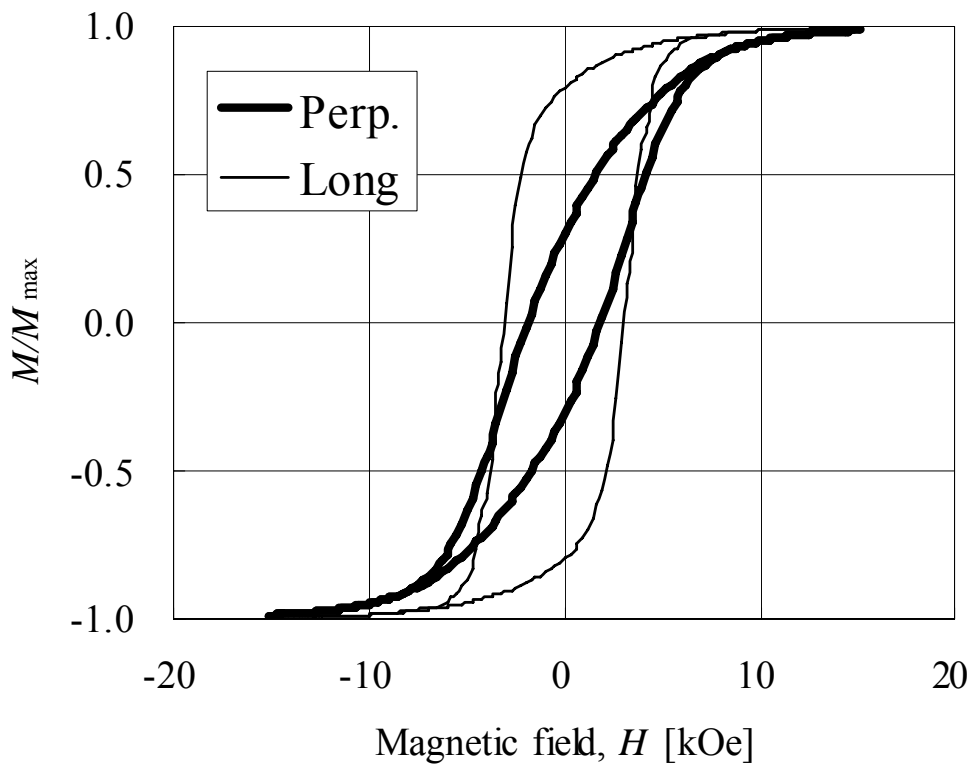
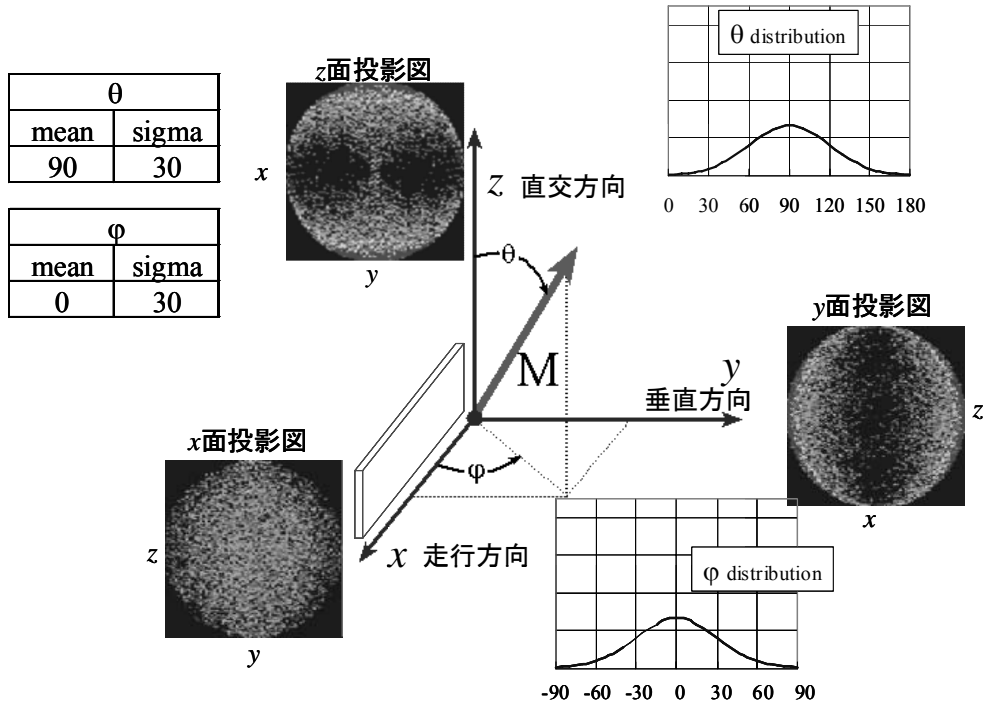


図 3.4.3-4 Model B の容易軸分布と M - H ループ

Model C-----ランダムに配向した媒体の場合

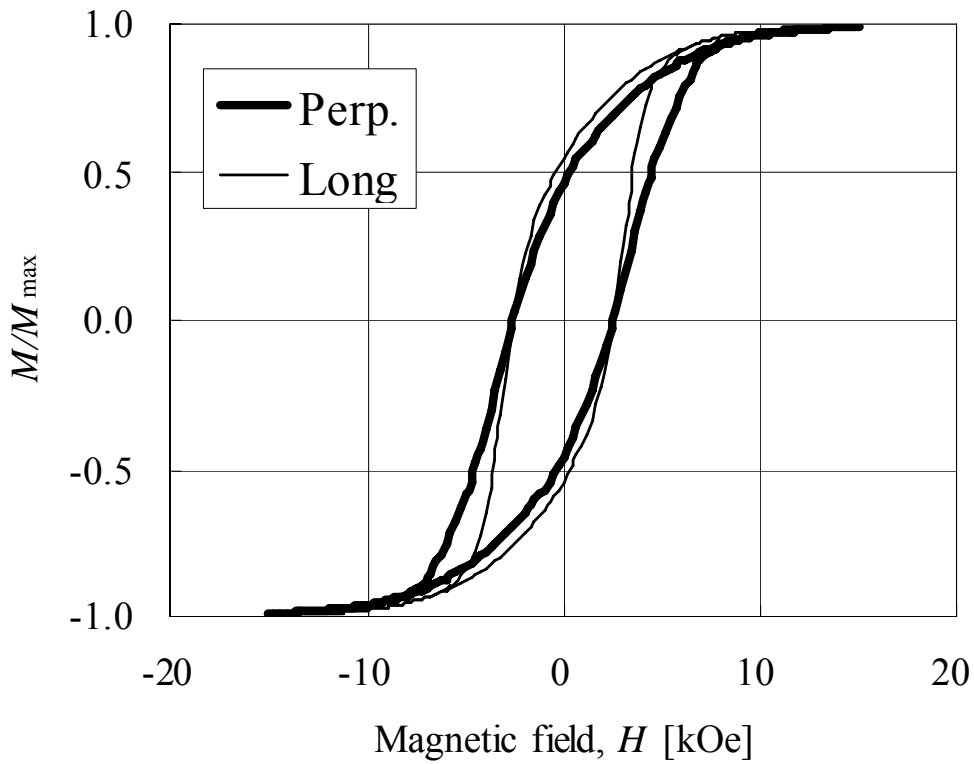
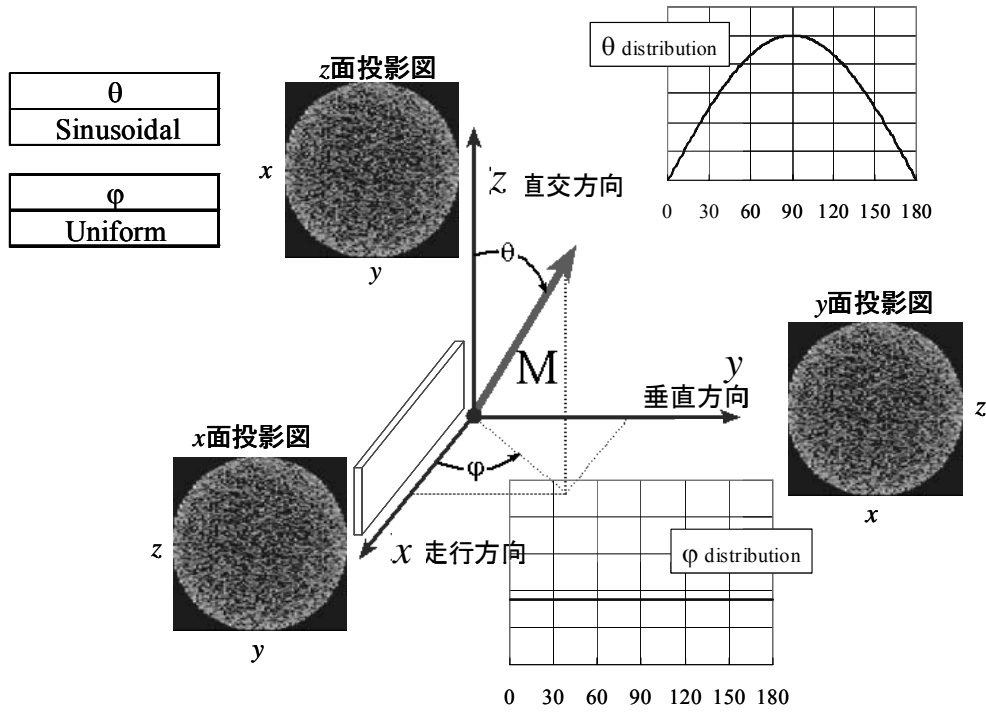


図 3.4.3-5 Model C の容易軸分布と M - H ループ

Model D-----垂直方向に配向した媒体の場合

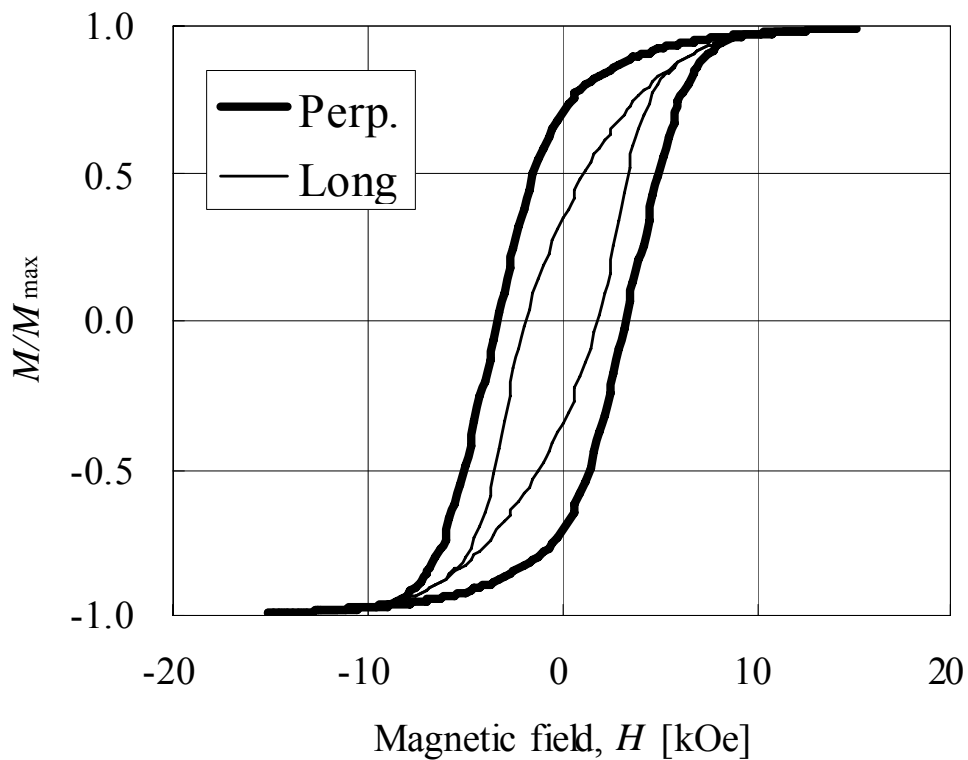
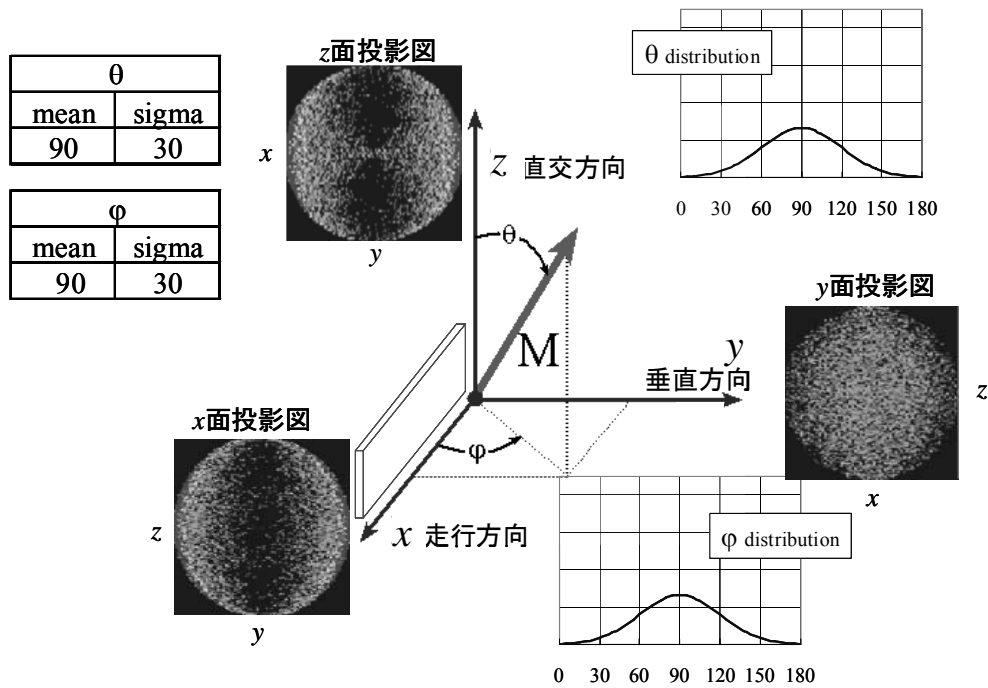


図 3.4.3-6 Model D の容易軸分布と M - H ループ

Model E-----強く垂直方向に配向した媒体の場合

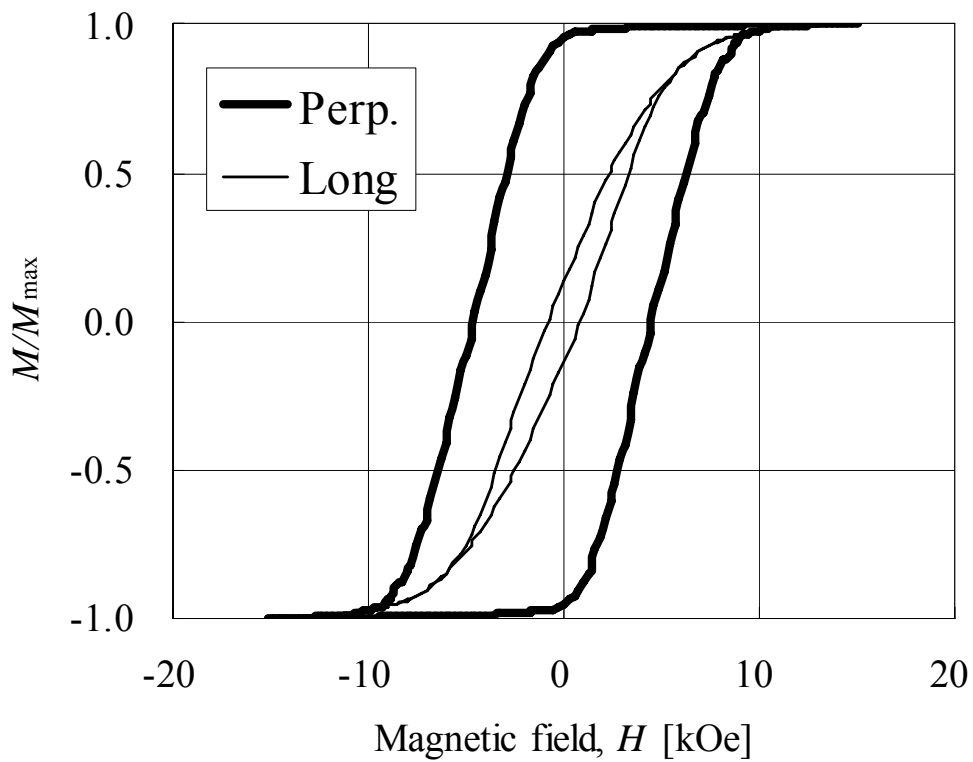
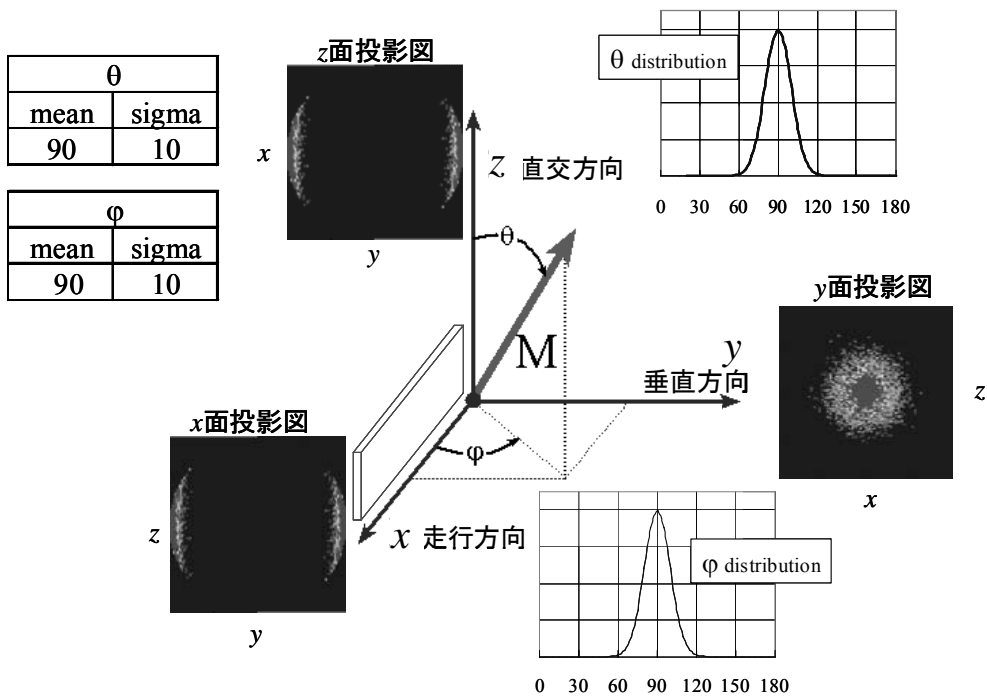


図 3.4.3-7 Model E の容易軸分布と $M-H$ ループ

(2) SNR の計算

これまでに、実用化されているリニアテープシステムの線密度は、400 kbpi(200 kfci)に到達していない、しかし、今後の高記録密度媒体として、メタルに変わる新規な素材を導入してくる為には、著しい記録密度の向上が期待されている。ここでは、600 kbpi(300 kfci)をターゲットとして記録再生特性の計算を進めた。まず、各モデルに対して、最適記録電流に相当する最適記録ギャップ磁界を 300 kfci の記録密度で求めた。

次に、各モデルの最適記録ギャップ磁界を用いて、SNR を算出した。SNR の計算は G. Mian の方法[C34]を用いて、時間領域で自己相関 SNR(AC-SNR : 付録 B 参照)にて行った。具体的手順を、図 3.4.3-8 を用いて次に説明する。

- ① 各モデルに、対応した媒体を計算機上で 2 つ(図 3.4.3-8 の M1 と M2)準備する。これら 2 つの媒体は、巨視的には同一のモデル($M-H$ ループは同じ)であるが、微視的には異なる媒体である。即ち、物理量の平均値や分布は同一であるが、個々の対応するセルの物理量は必ずしも同一にはなっていない。即ち、これらは「一つのテープの異なった場所」に相当する。M1 と M2 の再生出力の計算結果は概ね一致するが、微視的には異なっており、これがノイズに相当する。計算機上では、分布を生成する乱数の初期値を変えることで 2 つの媒体を生成する。
- ② これら 2 つの媒体に、63 bit の擬似ランダム系列(PRBS : Pseudo Random Binary Sequence)信号をそれぞれの最適記録ギャップ磁界で記録し、再生信号を計算する。
- ③ 2 つの計算結果の相関を γ とすると、SNR は

$$\text{SNR} = 10 * \log_{10} \left(\frac{\gamma}{1 - \gamma} \right)$$

で求めた。

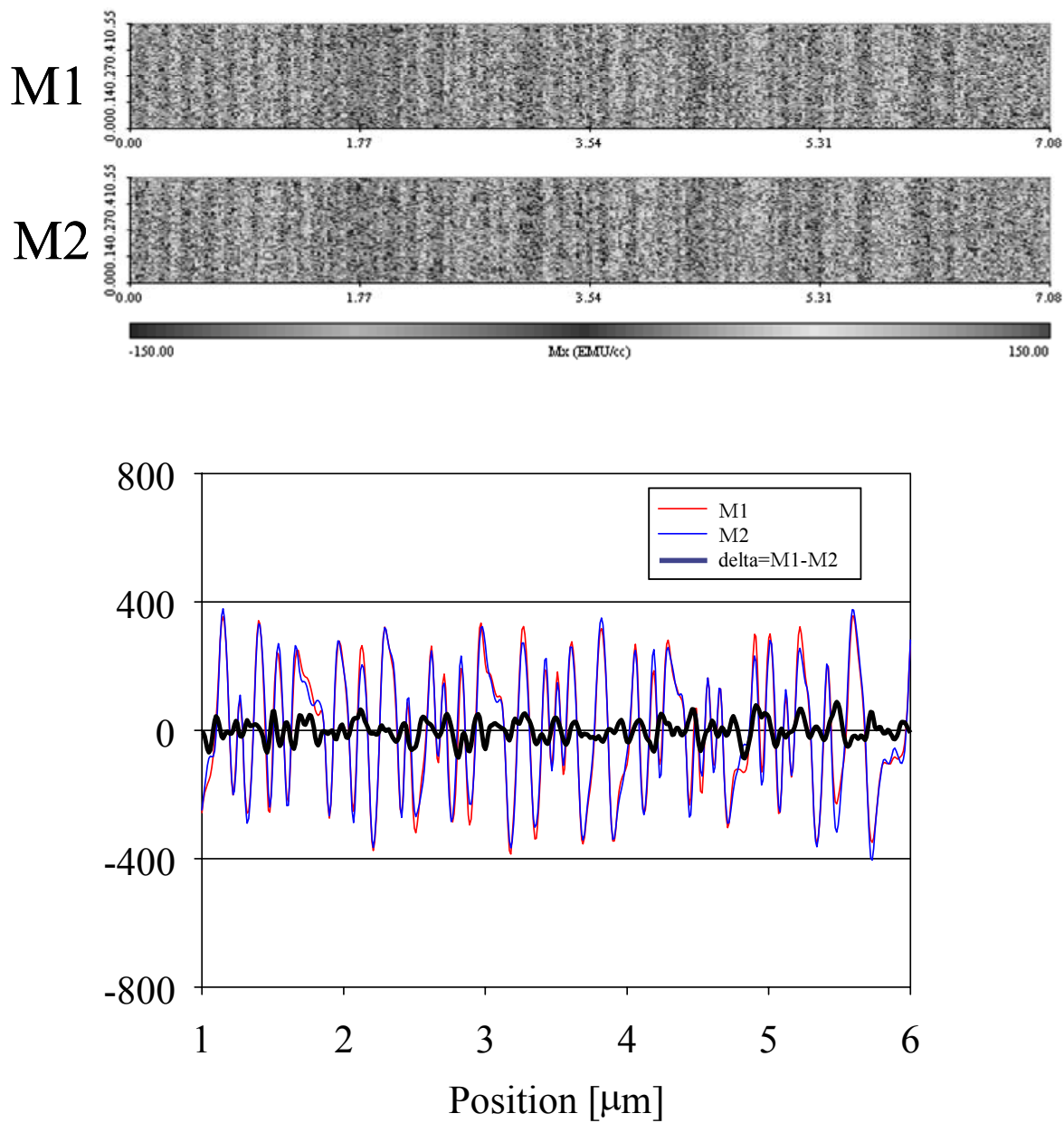


図 3.4.3-8 媒体モデル M1 と媒体モデル M2 の再生信号計算結果

(3) サンプル作製

実験サンプルは、長手配向(Sample L)、無配向(Sample U)、垂直配向(Sample P)の3種作製した。これらの特性一覧を、表 3.4.3-2 に示す。 S_{QL} と S_{QP} は長手及び垂直方向の角型比、 H_{cL} と H_{cP} は長手及び垂直方向の保磁力、 R_a は AFM で測定した表面粗さである。いずれのサンプルも同一条件で作製しているが、塗布の乾燥工程で印加する磁界の方向を変えて配向方向を変えている。即ち、Sample Lは長手方向に、Sample Pは垂直方向に磁界を印加し、Sample Uは、乾燥工程で磁界印加を行わずに作製したサンプルである。

Sample L, Sample U, Sample P の断面 TEM 写真を図 3.4.3-9 に示す。写真から分かるように、Sample Lは、板状粒子の板面垂直方向が長手方向に、Sample Pは垂直方向に配向しており、Sample Uは、特定の向きに配向していない様子が観察できる。一方、配向方向による著しい充填率の差は、現れていない。

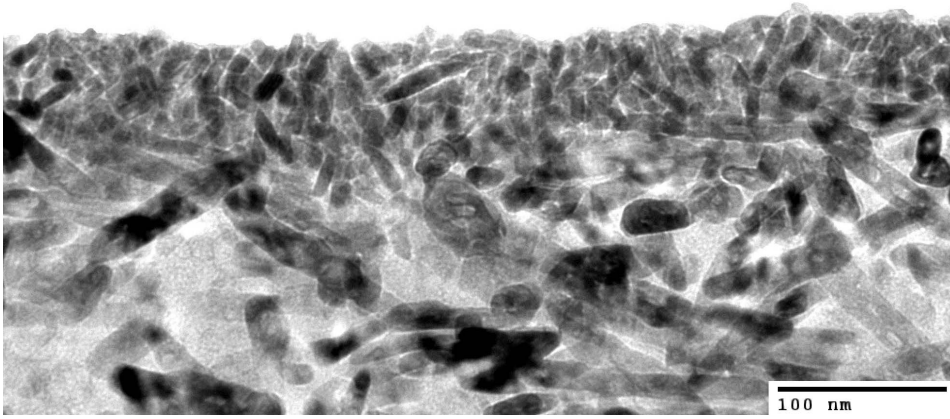
ここで用いた磁性体は、平均板径は約 20 nm で、平均板厚は約 7 nm の同一ロットの磁性体を用いている。また、表に示したように、これらのサンプルは、磁性層厚さが 69 ~ 71 nm で、表面粗さ R_a が 2.2~2.3 nm と、ほとんど同じ値となっていることから、特性の差は配向のみによるものと考えてよい。

表 3.4.3-2 サンプル一覧[C16]

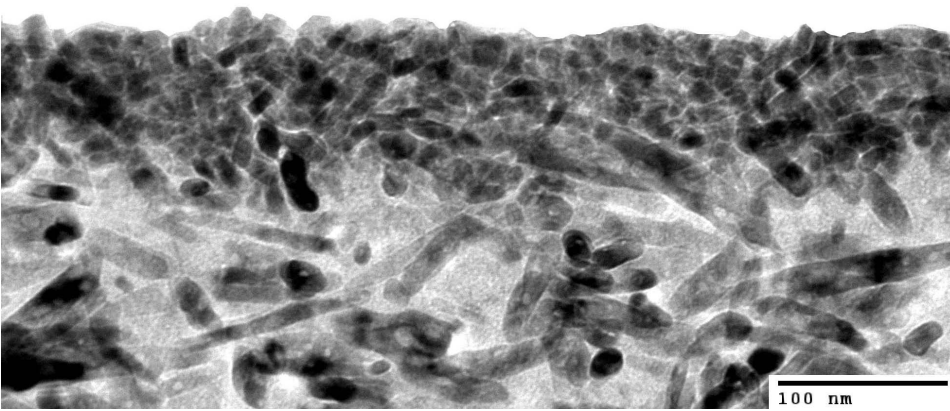
Sample		Sample L	Sample U	Sample P
S_Q	S_{QL}	0.70	0.40	0.26
	S_{QP}	0.50	0.69	0.84
H_c [Oe]	H_{cL}	2620	1950	1410
	H_{cP}	2060	2460	2830
Thickness [nm]		70	69	71
Roughness, R_a [nm]		2.3	2.2	2.2

配向度という観点で各サンプルを比較すると，Sample P の垂直方向の保磁力 H_{cP} 及び角型比 SQ_P は，いずれも，Sample L の長手方向の保磁力 H_{cL} 及び角型比 SQ_L と比較して大きな値となっていることが分かる．また，Sample U は磁界印加せずに作製したにも関わらず，必ずしも完全なランダム配向ではなく，若干ではあるが，垂直方向に配向 ($SQ_P > SQ_L$ ，及び， $H_{cP} > H_{cL}$) している．これは，バリウムフェライトの形状が板形状で，その板厚方向が容易軸であるため，塗布工程で，容易軸が垂直方向に配向しやすいことに起因している．

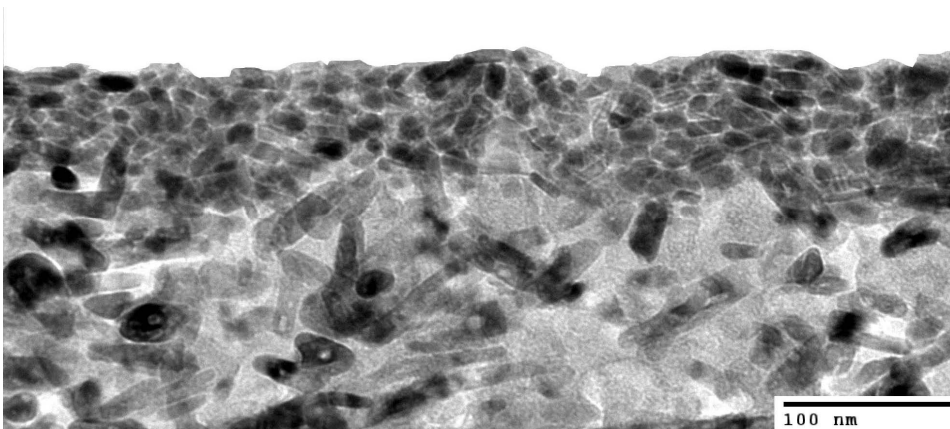
図 3.4.3-10, 11, 12 に Sample L, U, P の長手方向及び，垂直方向の $M-H$ カーブの VSM による測定結果を示す．縦軸は，それぞれの方向での 15 kOe での測定値で規格化している．概ね，Sample L が Model B に，Sample P が Model D に対応した配向となっている．



(a) Longitudinally oriented media (Sample L)



(b) Un-oriented media (Sample U)



(c) Perpendicularly oriented media Sample P

図 3.4.3-9 各サンプルの断面 TEM 像

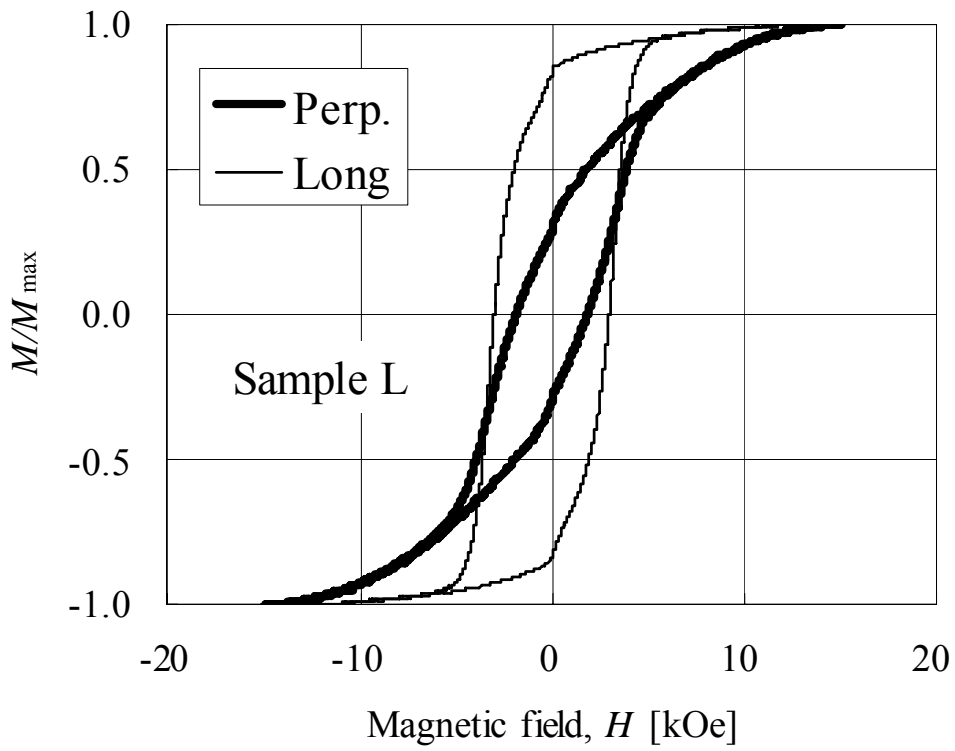


図 3.4.3-10 Sample L の M - H ループ

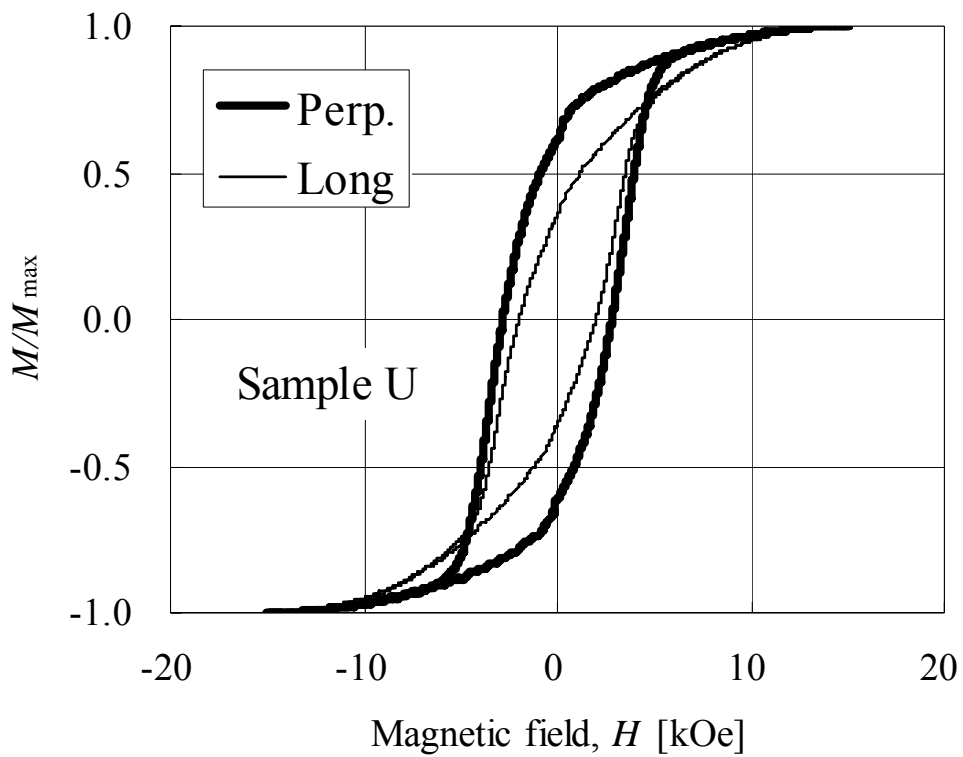


図 3.4.3-11 Sample U の M - H ループ

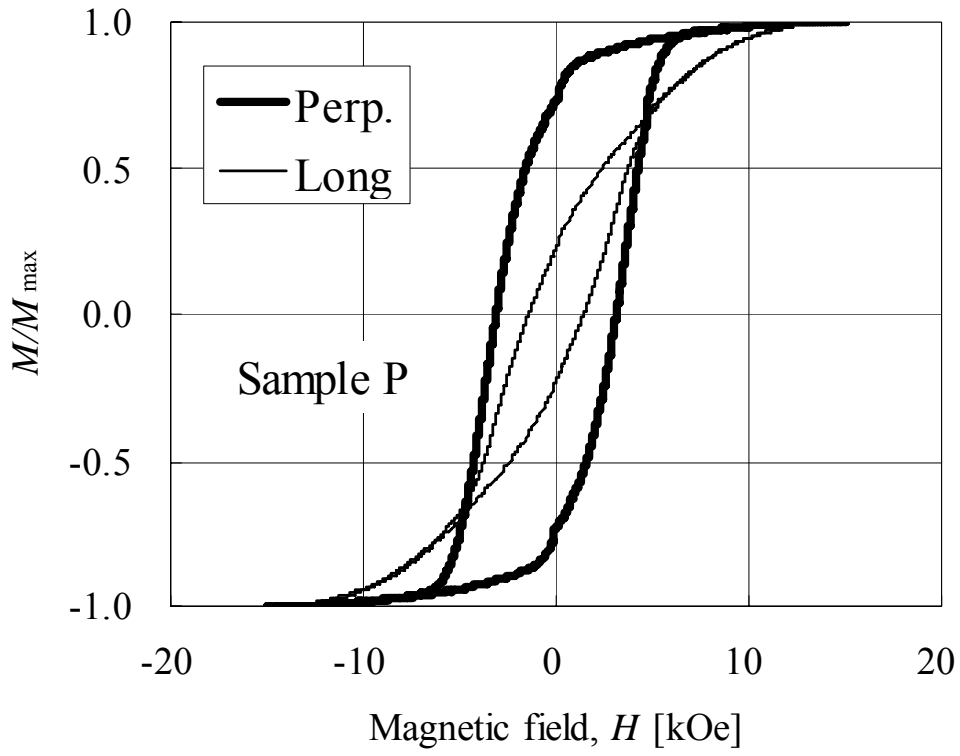


図 3.4.3-12 Sample P の M - H ループ

(4) 結果及び考察

次に、実測結果、及び、シミュレーション結果について議論する。測定には、前節と同様ループテスタを使った。測定に使用した磁気ヘッドの仕様を、表 3.4.3-3 に示す。ここで、再生用 GMR ヘッドは、シールド間距離が 0.08 μm のものと、0.12 μm の 2 種類用いている。シールド間距離が 0.08 μm のものは、シミュレーションとの比較目的に 300 kfcf での再生出力と 600 kbpf での SNR の測定に用いた。その他の測定は、シールド間距離が 0.12 μm のものを用いている。この測定では、媒体間の相対的な性能差と配向の関係を求めることが重要なため、機器ノイズなどの影響を受けにくいように再生ヘッドのトラック幅は比較的広めの 0.9 μm の GMR ヘッドを用いた。記録ヘッドは、インダクティブの薄膜リングヘッドを用いた。磁極の飽和磁束密度は 18 kG であり、全てのサンプルを十分飽和記録できるレベルであった。

表 3.4.3-3 ヘッド仕様

Read Element		Write Element	
Type	GMR	Type	Thin film
Shield to Shield spacing	0.08, 0.12 μm	Saturation flux density	18 kG
Read track width	0.9 μm	Gap length	0.17 μm

まず、図 3.4.3-13 に、I/O 特性に相当する「記録ヘッドのギャップ中磁界と再生出力の関係」のシミュレーション結果を示す。図から明らかなように、最適記録磁界は、7 kOe から 9 kOe の範囲であった。「強い長手配向」の Model A が最も高い再生出力を示し、「強い垂直配向」の Model E が、次に高い再生出力を示し、「ランダム配向」の Model C ($SQ_p - SQ_L = 0$ の点)の再生出力が最も低くなっている。

図 3.4.3-14 は、配向度に対する出力の関係について、図 3.4.3-15 は配向度に対する SNR の関係について、シミュレーション結果と実測結果を比較したものである。横軸の配向度は、垂直方向の角型比 SQ_p と長手方向の角型比 SQ_L の差 $SQ_p - SQ_L$ であり、ここで、 SQ_p は、垂直方向の反磁界係数を 4π として補正して求めた値である。シミュレーション結果は、Model C を基準(0 dB)にしてプロットしたが、先に述べたように、Sample U は、「完全なランダム配向」ではない($SQ_p \neq SQ_L$)。そこで、Sample U の縦軸

をシミュレーション結果に合わせてプロットし、Sample P と Sample U の測定結果を Sample U との相対関係でプロットした。I/O 特性の結果のところでも議論したように、Model A の再生出力は Model E の再生出力よりも高くなっている。これは、この長手媒体 Model A ($M_s=135 \text{ emu/cm}^3$, $H_k=7000 \text{ Oe}$) に、300 kfcf の信号が記録された状態での反磁界が、記録状態を乱して再生出力を低下させるほど大きくないことを意味している。Bai 等は、軟磁性下地層を持たない垂直媒体 ($M_s=400 \text{ emu/cm}^3$, $H_k=14,000 \text{ Oe}$) に対して、リングヘッドで記録する場合についてシミュレーションしている [C35]。その結果によれば、垂直媒体が長手媒体に対して優位性を示すのは、600 kfcf よりも、さらにもっと高い記録密度の場合である。これらのことから推定して、この研究において、長手、垂直を問わず、配向媒体が無配向媒体よりも、高い性能を示した要因は、配向によって、再生に全く寄与しない磁化のトラック幅方向成分が低下し、再生出力に寄与する、長手もしくは垂直成分が増加したことにあると推察される。

図 3.4.3-16 は、Sample L, Sample U, Sample P の再生出力の線記録密度依存性の実測結果である。垂直配向媒体 (Sample P) は、長波長領域で、再生出力が低いが、短波長領域では、最も高い再生出力を示し、結果として D_{50} (再生振幅が孤立波の半分になる線記録密度) が最も高くなり、340 kfcf に達している。

図 3.4.3-17 は、単一波 (200 kfcf) を記録した場合と DC イレーズした場合の媒体ノイズの測定結果である。低周波領域で、長手媒体のノイズレベルが高くなっていることが分かる。つまり、長手配向の Sample L は、他の配向媒体と比較して、出力、ノイズともに高くなっている。このような媒体は、いわゆる BB-SNR (広帯域 SNR, 単一の短波長記録時のその出力と積分ノイズの比: 付録 B 参照) は、低域のノイズの影響で低い値となってしまうが、より実技性能を示す AC-SNR (自己相関 SNR) や Detector SNR (検出点における SNR, 実信号を記録再生し、波形等価後の信号電力パワーとノイズ (理想値とのズレ) 電力の比: 付録 B 参照) は、必ずしも低下しない。表 3.4.3-4 に各サンプルの SNR 測定値を、Sample U 基準で示す。BB-SNR は Sample L が最低の値となっているが、AC-SNR や Detector SNR は無配向の Sample U が最も低い結果となっており、いずれの評価指標を用いても垂直媒体である Sample P が最も優れた媒体となっている。

図 3.4.3-18 は、孤立波の測定結果である。長手配向媒体と垂直配向媒体では明確な差異が観察される。長手配向媒体の孤立波は、対称で、一般的な MP 媒体と類似の形状をしているのに対して、垂直配向媒体の孤立波は非対称で、メインピークの手前に、比較的深い、アンダーシュートがある。このアンダーシュートとメインピークの波形干渉が、短波長側での高い出力をもたらしていると考えられる。

表 3.4.3-4 各サンプルの SNR 比較

Sample	Sample L	Sample U	Sample P
BB-SNR	-0.2 dB	0 dB	+1.0 dB
AC-SNR	+0.6 dB	0 dB	+1.5 dB
Detector SNR	+0.1 dB	0 dB	+0.8 dB

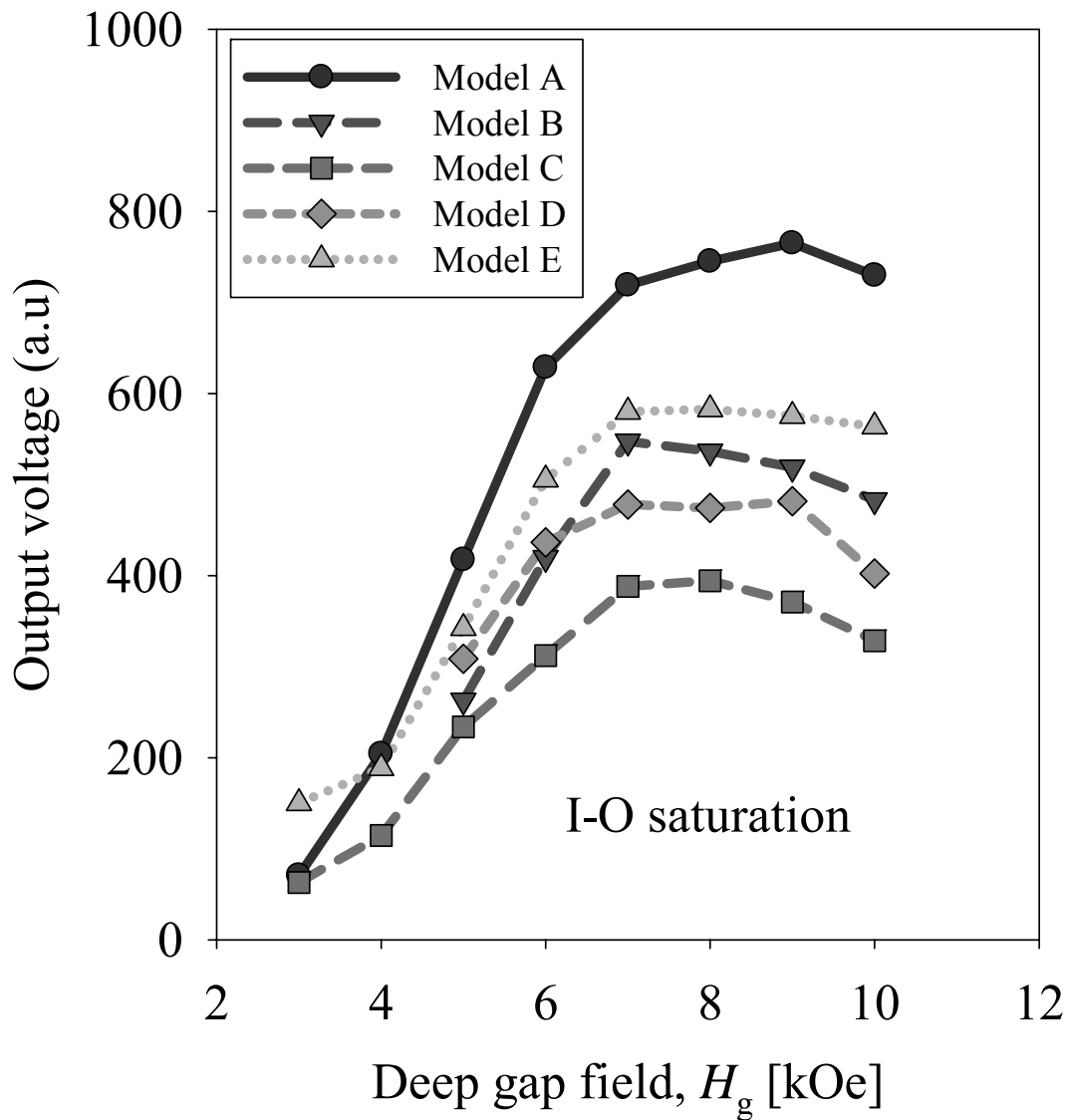


図 3.4.3-13 記録ヘッドのギャップ磁界 H_g と再生電圧の関係

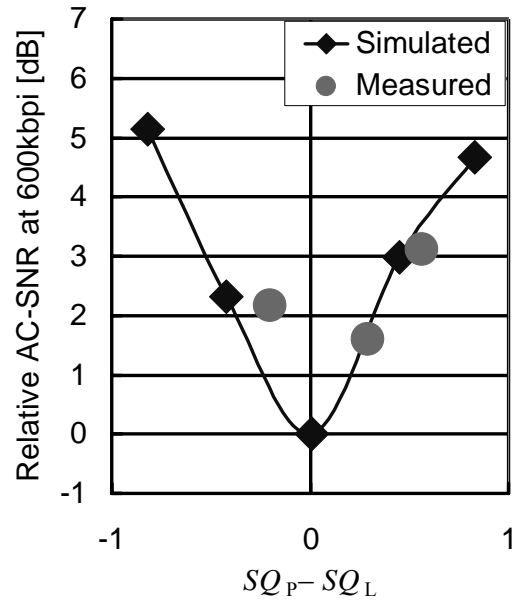
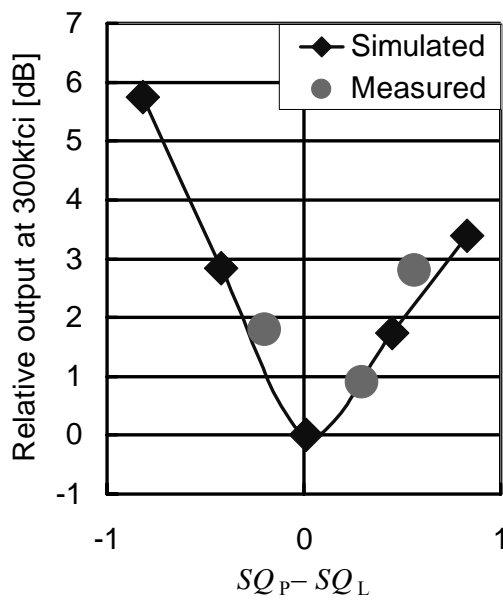


図 3.4.3-14 再生出力の配向度依存性[C16]

図 3.4.3-15 SNR の配向度依存性[C16]

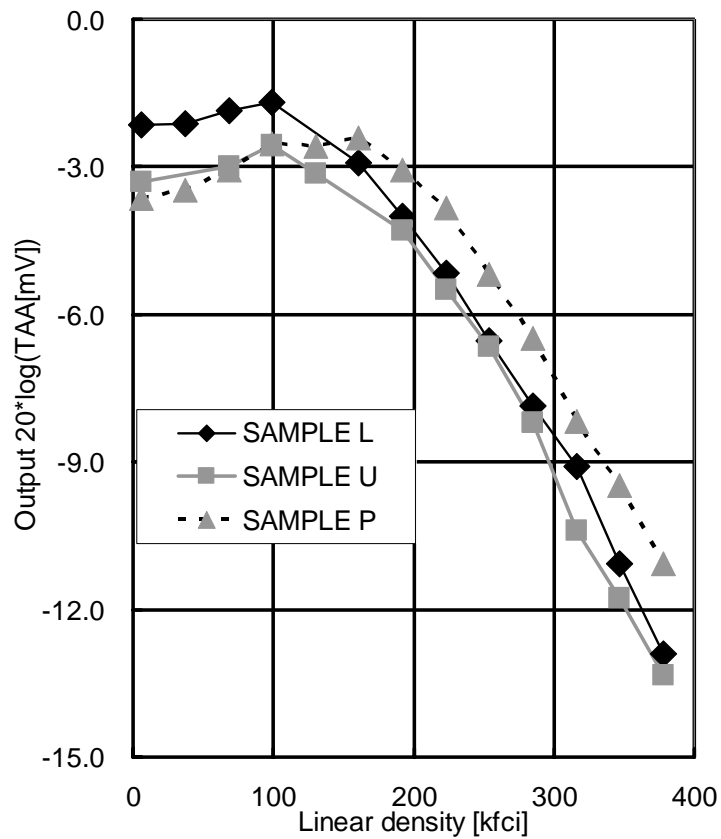


図 3.4.3-16 各配サンプルの再生出力の記録密度特性

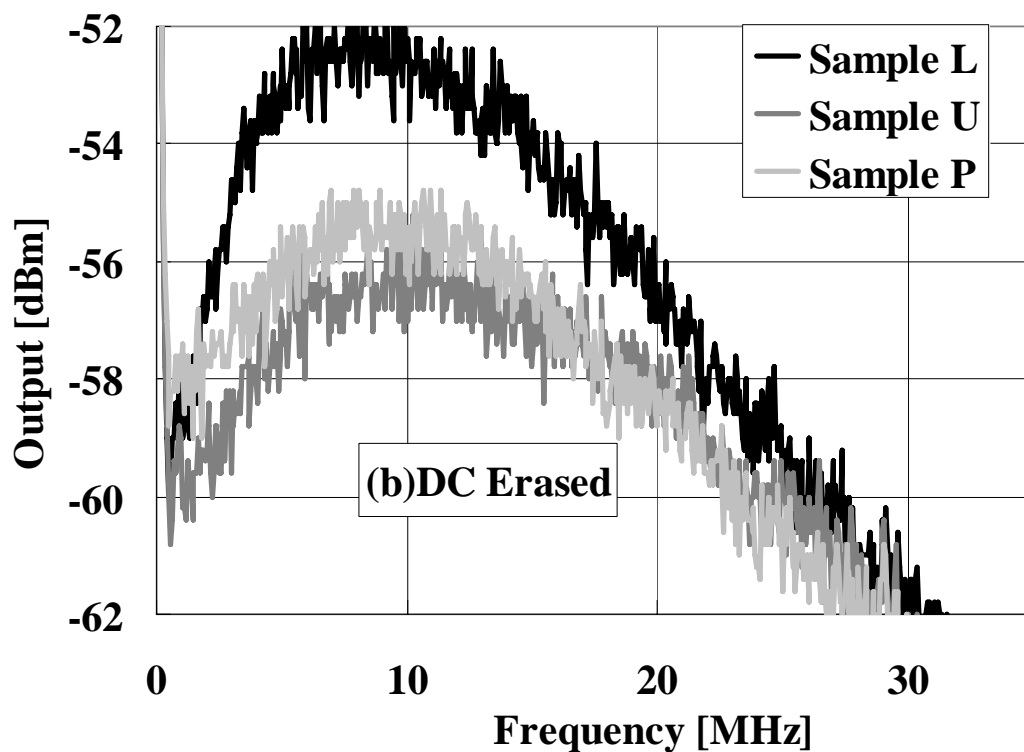
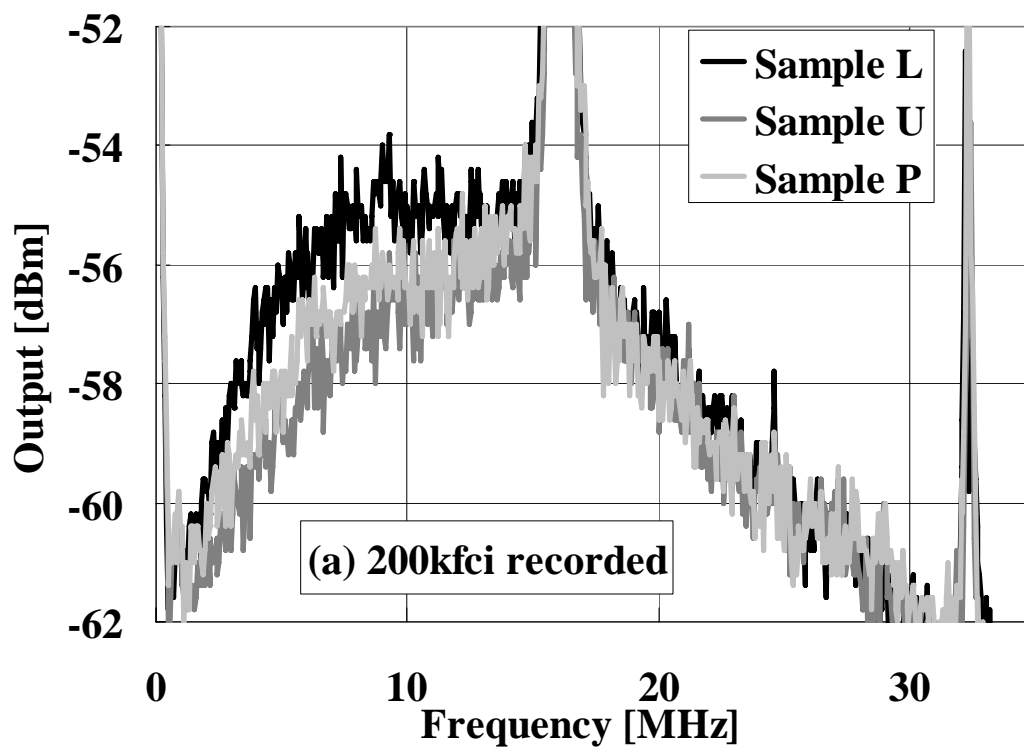


図 3.4.3-17 200 kfcf の単一信号を記録した状態及び DC イレーズ状態での媒体ノイズ

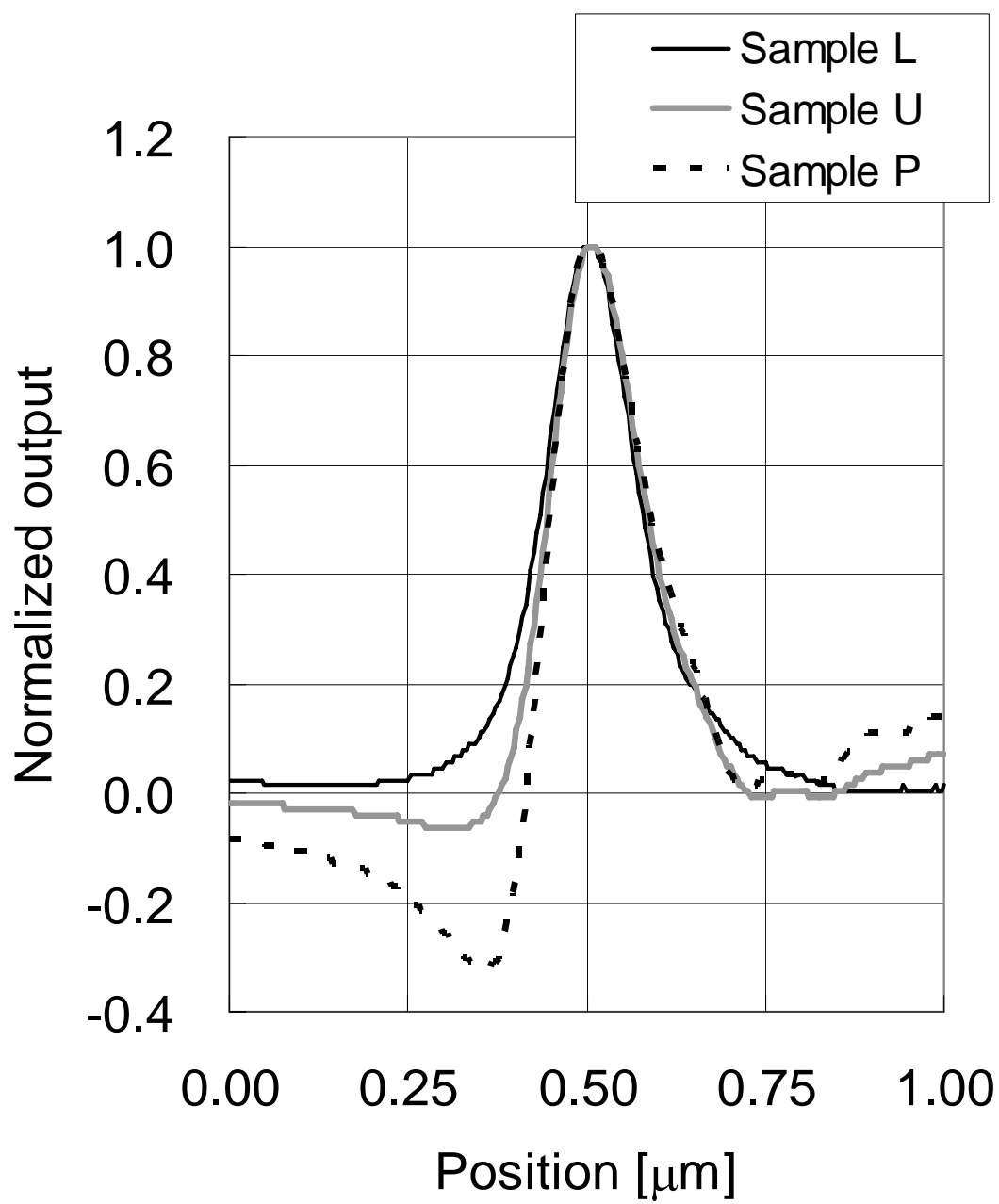


図 3.4.3-18 Sample L, U, P の孤立再生波形

(5) まとめ

バリウムフェライト媒体の配向と記録再生特性の関係について、実験とシミュレーションを用いて議論してきた。その結果、長手配向及び垂直配向、いずれの配向方向であっても、無配向の媒体と比較して、電磁変換特性の向上が期待できることが明らかになった。この実験の範囲では、垂直媒体(Sample P)の波長特性が最も優れており、長手配向媒体(Sample L)よりも高い特性を示したが、この要因は、これら二つの媒体の配向度の違いが影響した結果と推定される。即ち、垂直媒体である Sample P の垂直方向への配向度は、長手配向媒体である Sample L の長手方向への配向度よりも高かったことが要因と推定される。シミュレーション結果によれば、両者が極限まで配向された状態では、300 kfci 程度の記録密度では、長手配向媒体のほうが優れた特性(高い SNR)を与える結果となっている。しかし、バリウムフェライト粒子の形状が板状であり、板面に垂直な方向が容易軸であることを考えると、長手配向させることは、困難であり、垂直配向によって性能向上を達成するほうが容易であると推定される。

§ 3.4.4 磁性粒子の異方性分散や磁化量分散と記録再生特性

記録媒体において、磁性粒子の磁気特性のバラツキは大きなノイズ要因であり、均一な粒子を一様に敷き詰めることで優れた媒体ができることは容易に推察できる。しかし、組成分布にムラがなく、サイズ・形状が完全に一定の粒子を製造することは必ずしも容易ではない。これらのムラ・バラツキは個々の粒子の異方性磁界 H_k や飽和磁化 M_s などのバラツキとして記録・再生特性に影響を与えると推察される。前項までの議論で用いてきた磁性粒子の異方性磁界の分布、相対標準偏差は、概ね 30 % 程度である。今後、均一な、分布の少ない磁性体開発を行う上で、分布改善が性能に及ぼす影響を見積もることは重要なことである。そこで、前項で用いたシミュレーションを用いて、分布改善によって期待できる SNR 向上を見積もった。また、実際に H_k 分布の異なるサンプルでテープを作製し、 H_k 分布と SNR の関係を調べた。

(1) シミュレーションモデル

シミュレーションの基本条件は、前項の Model C と同一であり、ランダム配向として計算した。即ち、 θ は正弦波的な分布とし、 φ は一様分布、 H_k の平均値 $\langle H_k \rangle$ は 7,000 Oe、 M_s の平均値 $\langle M_s \rangle$ は 135 emu/cm³ としている。前項の Model C と異なるのは M_s 及び H_k の分布であり、これらの異方性磁界の相対標準偏差 $\sigma(H_k)$ 、及び磁化量の相対標準偏差 $\sigma(M_s)$ を両者ともに 30 %、20 %、10 % と変化させた。表 3.4.4-1 にモデル一覧を示す。また、シミュレーション条件を、表 3.4.4-2 に示す。記録磁界は、ここでも Lindholm 型磁界として計算した。

(2) シミュレーション結果

図 3.4.4-1 に磁化量の相対標準偏差を 30 % 一定とし、異方性磁界の相対標準偏差 $\sigma(H_k)$ を 30 % (2100 emu/cm³)、20 % (1400 emu/cm³)、10 % (700 emu/cm³) と変化させた場合の M - H ループを示す。 $\sigma(H_k)$ が小さくなるに従って、保磁力 H_c が増大し、また、 H_c 付近での立ち上がりが急峻になっている。

図 3.4.4-2 には、300 kfci の単一波長での入出力特性(記録磁界依存性)のシミュレーション結果を、Model K33($\sigma(M_s)=30\%$, $\sigma(H_k)=30\%$)、K32 ($\sigma(M_s)=30\%$, $\sigma(H_k)=20\%$)、K31($\sigma(M_s)=30\%$, $\sigma(H_k)=10\%$)、及び K11($\sigma(M_s)=10\%$, $\sigma(H_k)=10\%$) の 4 種に対してプ

ロットしている。 H_k 分布を低下させることによって、最適記録磁界(即ち最適記録電流)が低下し、立ち上がりが急峻になっていることがわかる。また、 H_k 分布が同一で、 M_s 分布が異なる K11 と K31 を比べると両者はほとんど重なっていることが分かる。即ち、 I/O 特性に影響を与えているのは H_k 分布であり、 M_s 分布ではないことが分かる。

図 3.4.4-3 には、磁気特性の分布による SNR の変化を示す。横軸が、 $\sigma(H_k)$ で、 $\sigma(M_s)=30, 20, 10$ % に対してプロットしている。 $\sigma(H_k)$ が 10 パーセントポイント小さくなると、約 1 dB の SNR 改善が期待できることが分かる。

表 3.4.4-1 モデル一覧

Model No	配向	$\langle H_k \rangle$	$\langle M_s \rangle$	$\sigma(M_s)$	$\sigma(H_k)$
K11	ランダム 配向	7000 Oe	135 emu/cm ³	13.5	700
K12				13.5	1400
K13				13.5	2100
K21				27.0	700
K22				27.0	1400
K23				27.0	2100
K31				40.5	700
K32				40.5	1400
K33				40.5	2100

表 3.4.4-2 記録再生シミュレーション条件

記録ヘッドギャップ長	0.17 μm
再生ヘッドシールド間距離	0.08 μm
スペーシング	20 nm

(3) 実験結果

$\sigma(H_k)$ を改善するためには、粒子の製造条件の均質化などが重要と推定されるが、ここでは、組成が異なり、 H_k の平均値の異なる複数の粒子を混ぜることで、 $\sigma(H_k)$ の異なるサンプルを作製し、 $\sigma(H_k)$ と SNR の関係について調査した。従って、ここで、得られる $\sigma(H_k)$ は、通常の粒子の分布(30 %程度)に対して、これを劣化(大きく)した場合のみであり改善した場合ではない。図 3.4.4-4 に結果を示す。ここで、 $\sigma(H_k)$ の測定は、二軸の VSM を用いた方法[C36], [C37]で行った。標準の $\sigma(H_k) \approx 30\%$ に対して、異なる組成の粒子を混ぜることによって、 $\sigma(H_k) \approx 45\%$ 程度まで変化させた。一方、個々の粒子の M_s を測定することは不可能であり、 $\sigma(M_s)$ は定量できていない。しかし、組成を大きく変化させたサンプルでも、 M_s の変化は、20 %程度以下であり、組成ばらつきに起因しての $\sigma(M_s)$ は比較的小さな値となると推定される。図 3.4.4-4 から、 $\sigma(H_k)$ が 10 パーセントポイント小さくなると、約 1 dB の SNR の改善が期待できることが分かる。

(4) まとめ

本項では、個々の磁性粒子の磁気的特性のばらつきが、記録再生特性に及ぼす影響について議論した。その結果、磁気特性の分布の改善(分布を小さくすること)が記録再生特性の向上には重要であり、現状、相対標準偏差で 30 %程度である H_k の分布を 10 %程度まで改善できれば SNR で 2 dB 程度の改善が期待できることが明らかになった。

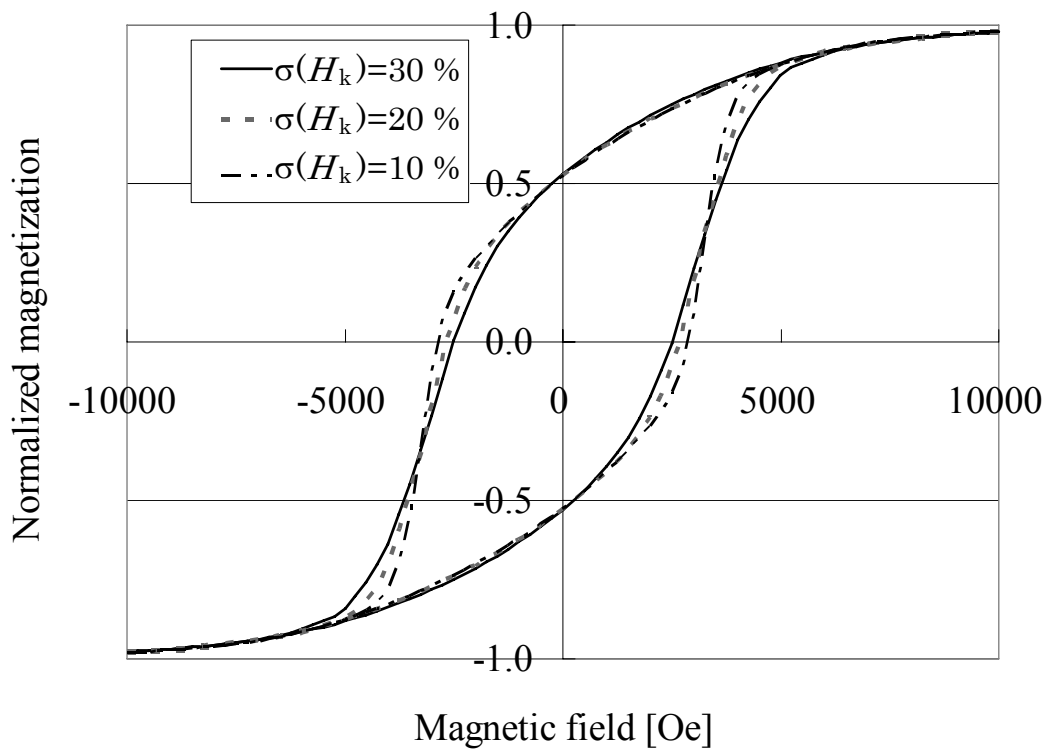


図 3.4.4-1 M - H ループのシミュレーション結果

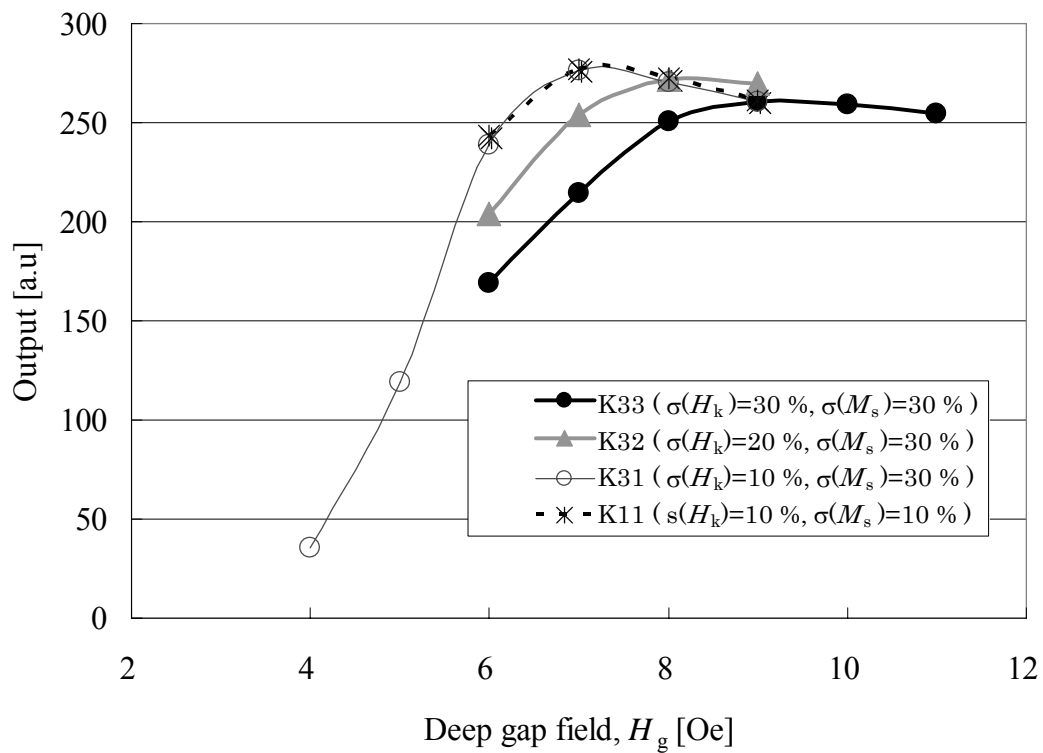


図 3.4.4-2 I/O カーブのシミュレーション結果

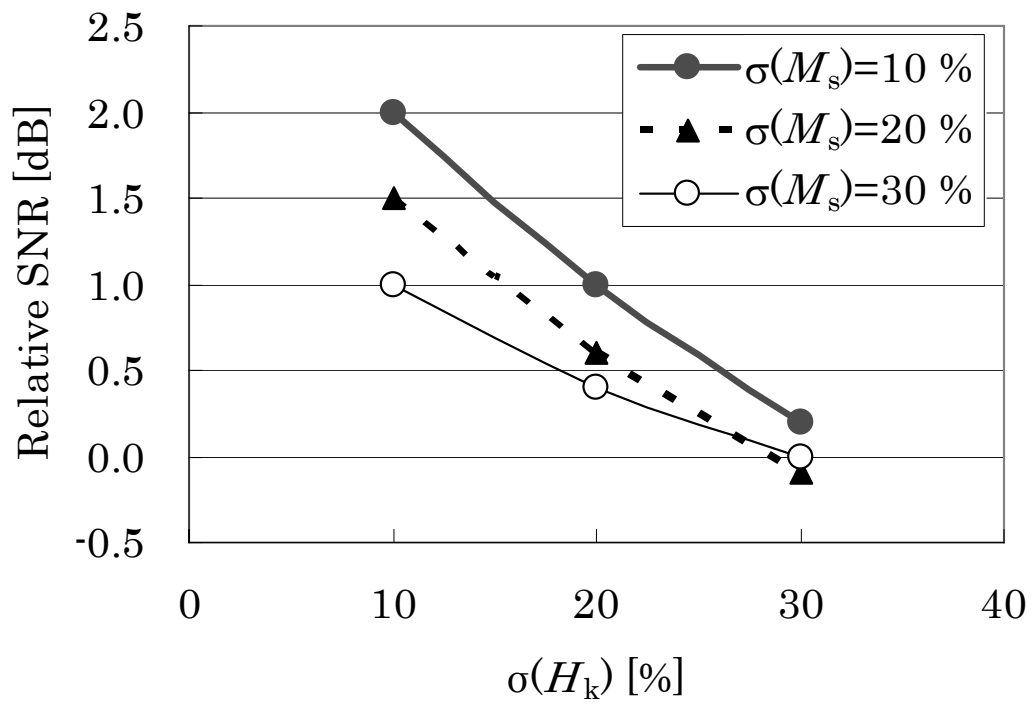


図 3.4.4-3 SNR と分布の関係の計算結果

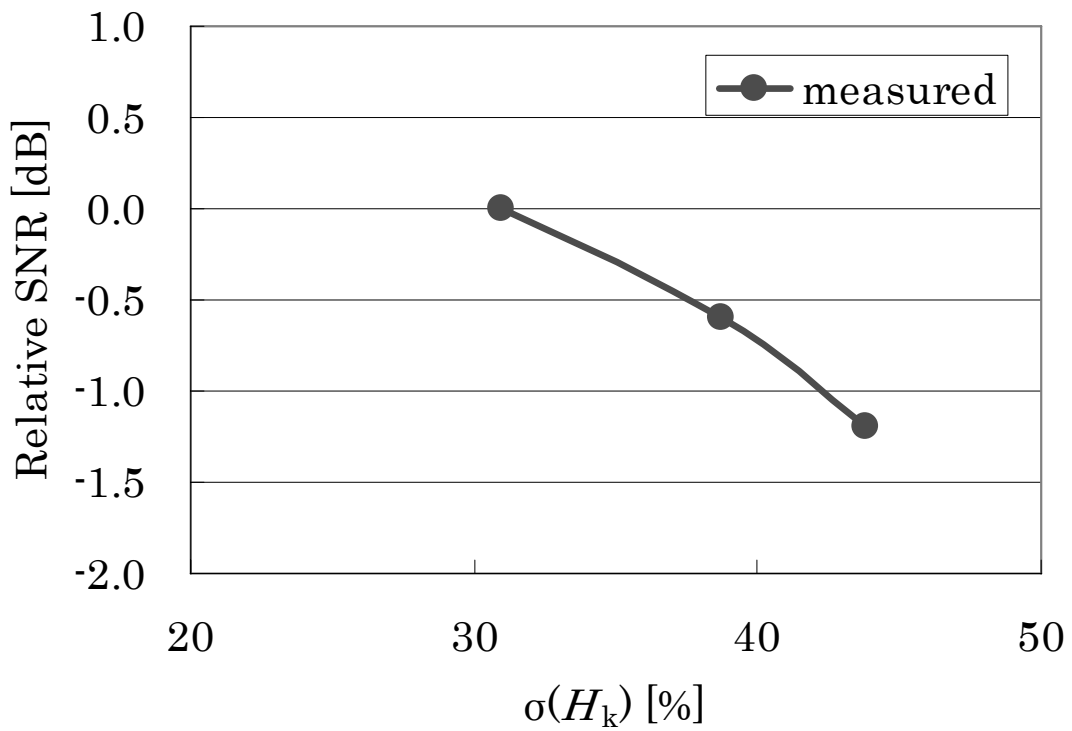


図 3.4.4-4 SNR と分布の関係の実測結果

§ 3.4.5 バリウムフェライト媒体の熱的安定性

§ 3.4.2 においては、バリウムフェライト粒子を微細化することによる電磁変換特性向上の効果について調査する際に、熱安定性パラメータ $K_u V/k_B T$ を、60 以上とすることで熱安定性は維持できる[C31]ものとして議論した。しかし、熱揺らぎに伴う磁化の反転は、熱安定性パラメータ $K_u V/k_B T$ のみに依存しているわけではない。記録された状態の個々の粒子の磁化の向きと、その粒子が感じている磁界強度によって、実際の反転確率は大きく変わってくるはずである。本項では、出力の経時変化を実測することで、長期保存に対する信頼性について議論する[C18]。

(1) 磁化の反転確率

ある方向に磁化され、エネルギー的に極小値にある単磁区の磁性粒子が、エネルギーギャップ ΔE を超えて、他の方向に向きをかえる粒子の数は、経過時間 t の間で

$$N(t) = N_0 (1 - e^{-t/\tau})$$

である。ここで、 N_0 は粒子の総数であり、 $\tau^{-1} = f_0 e^{-\Delta E/k_B T}$ 、また f_0 は 1 GHz のオーダーと言われている。この粒子が感じている磁界を磁化の向きと逆向きで大きさが H とすると、

$$\Delta E = K_u V \left(1 - \frac{H}{H_K}\right)^2$$

である。長手媒体では、記録の遷移近傍で H/H_K が大きくなり、その結果、 ΔE が低下し、記録が不安定になるが、バリウムフェライト媒体のように、垂直成分が多い媒体では、 H/H_K が負の値となり、遷移位置では、むしろ安定化する。仮に、 $H/H_K = 0$ とし、且つ、熱安定性パラメータ $K_u V/k_B T = 50$ と比較的小さな値としても τ は 10 万年を越え、実用的には、全く問題にならない安定性を持つことになる。しかし、このような議論は、熱揺らぎパラメータの分布を無視した議論であることに注意しなくてはならない。現実の粒子は非常に大きな体積分布をもち、結果として、熱揺らぎパラメータも大きな分布を持っている。ここで、分布を考慮し、 τ の値の分布を対数軸上で考える。即ち、 τ の値が $\ln \tau$ から $\ln \tau + d(\ln \tau)$ の間にある確率を $g(\tau)d(\ln \tau)$ とすると、

$$g(\tau)d(\ln \tau) = \left(\frac{g(\tau)}{\tau} \right) d\tau$$

であり,

$$N(t) = N_0 \left(1 - \int_{\tau=0}^{\infty} \frac{g(\tau)}{\tau} e^{-t/\tau} d\tau \right)$$

となる。図 3.4.5-1 に、熱揺らぎパラメータの平均値が同一で、分布がほとんど無い場合と、対数軸上で一様分布している場合の磁化減衰の様子を示す。実際に信号減衰を測定すると、熱揺らぎパラメータが 60 以上の場合でも、100 秒以下の時間領域においても対数時間に対して線形な減衰を示し、熱揺らぎパラメータの分布が大きいことをあらわしている。以下に実際の測定結果について議論する。

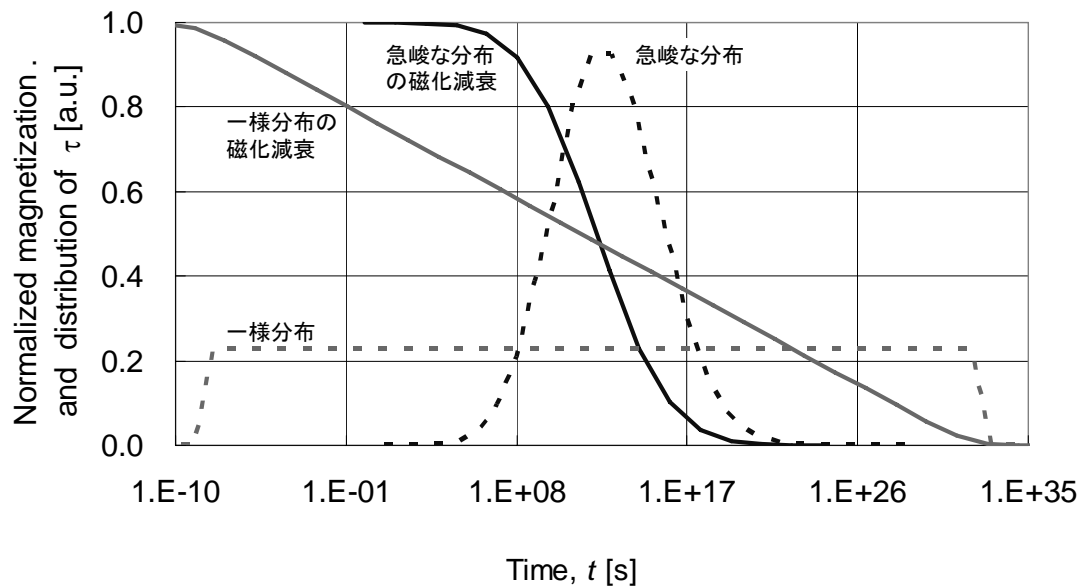


図 3.4.5-1 τ 分布の差による磁化減衰の違い

(2) 測定方法

測定には、図 3.4.2-1 に示したループテストを用いて、最初の回転で記録し、次回以降の回転で再生信号を繰り返し読み取る方法で行った。また、測定の前後に、同時記録再生を行い、その出力に変化が無いことを確認することで、測定中にスペーシングなどの他の要因による再生出力変化が無いことを確認した。表 3.4.5-1 に測定条件詳細を示す。

表 3.4.5-1 測定条件

記録ヘッドギャップ長	0.17 μm
再生ヘッドシールド間距離	0.12 μm
テープ速度	4 m/s
ループ長	0.91 m
記録密度	200 kfc
測定時間	> 30 s
測定周期	0.2275 s

(3) 減衰率(Decay rate)の測定

測定された再生出力の時間変化を時間の対数に対してプロットすると概ね直線で近似できる。その時の傾きを減衰率と定義し、dB/decade の単位で表現する。これは、経時が 10 倍になることに伴う出力変化を意味している。例えば、0.1 dB/decade とは、記録 1 秒後から 10 秒後までの間に、0.1 dB の出力低下が発生することを表し、また、10 秒後から 100 秒後の間に、さらに 0.1 dB 低下することを意味している。この例の場合、記録 1 秒(10^0 秒)後から 30 年間(10^9 秒)の間に、0.9 dB の出力低下をもたらすと推定される。

表 3.4.5-1 の条件で、さまざまなテープを測定すると、減衰率は概ね、0.04～0.1 dB/decade の値をとる。図 3.4.5-2 に、減衰率が 0.04 dB/decade の場合と、0.09 dB/decade の場合の測定例を示す。ここで示すように、出力減衰は、時間の対数に対して、線形となっている。

図 3.4.5-3 及び図 3.4.5-4 は、さまざまなメタル磁性体やバリウムフェライト磁性体

でテープを作製し、それらの減衰率を測定した結果をプロットしたものである。図 3.4.5-3 は横軸に磁性体の平均体積をとった場合であり、バリウムフェライト粒子は体積範囲が、 $1500 \text{ nm}^3 \sim 2100 \text{ nm}^3$ の範囲で、メタル磁性体は、 $900 \text{ nm}^3 \sim 4700 \text{ nm}^3$ の範囲で変化させている。図 3.4.5-4 は、横軸に熱安定性パラメータ $K_u V/k_B T$ をとったものであり、メタル磁性体は、 $150 \sim 560$ の範囲で、バリウムフェライトは $57 \sim 90$ の範囲の値をとっている。減衰率の体積依存性や熱揺らぎパラメータ依存性はメタルテープとバリウムフェライトテープでは異なった依存性を示している。メタル磁性体は、その平均体積が小さくなり、もしくは、熱揺らぎパラメータが小さくなるに従って減衰率が大きくなっていることが分かる。それに対して、バリウムフェライトは明らかにそのライン上にはなく、メタル磁性体はよりも熱揺らぎパラメータが小さいにも関わらず、比較的低い減衰率を維持している。この傾向は、定性的には、記録層内の磁界(反磁界)や、磁性体の配向から説明することができる。即ち、磁化が比較的高いメタル磁性体が、長手方向に記録されていると、記録遷移位置では、各磁性粒子は、磁化方向とは逆の向きに比較的大きな磁界を受け、不安定な状態であり、磁化の反転を起こしやすい。一方、バリウムフェライトは、メタル磁性体に比べて、磁化が $1/4$ 程度であり、熱揺らぎパラメータが比較的小さい場合でも、記録層内で逆方向に受ける磁界の強度は比較的低い。さらに、バリウムフェライト媒体の場合、垂直成分が支配的であり、垂直成分は、磁化遷移位置においては磁化方向を安定させる方向に磁界が印加される状態が実現していると考えられる。その結果、バリウムフェライト媒体の高い熱的安定性が実現していると推定される。バリウムフェライト媒体間の比較では、ここでの測定結果は、その熱揺らぎパラメータや体積に対して明確な傾向を示していない。これは、粒子の分布、即ち、体積 V や異方性磁界 H_k などの分布、が影響しているものと推定される。

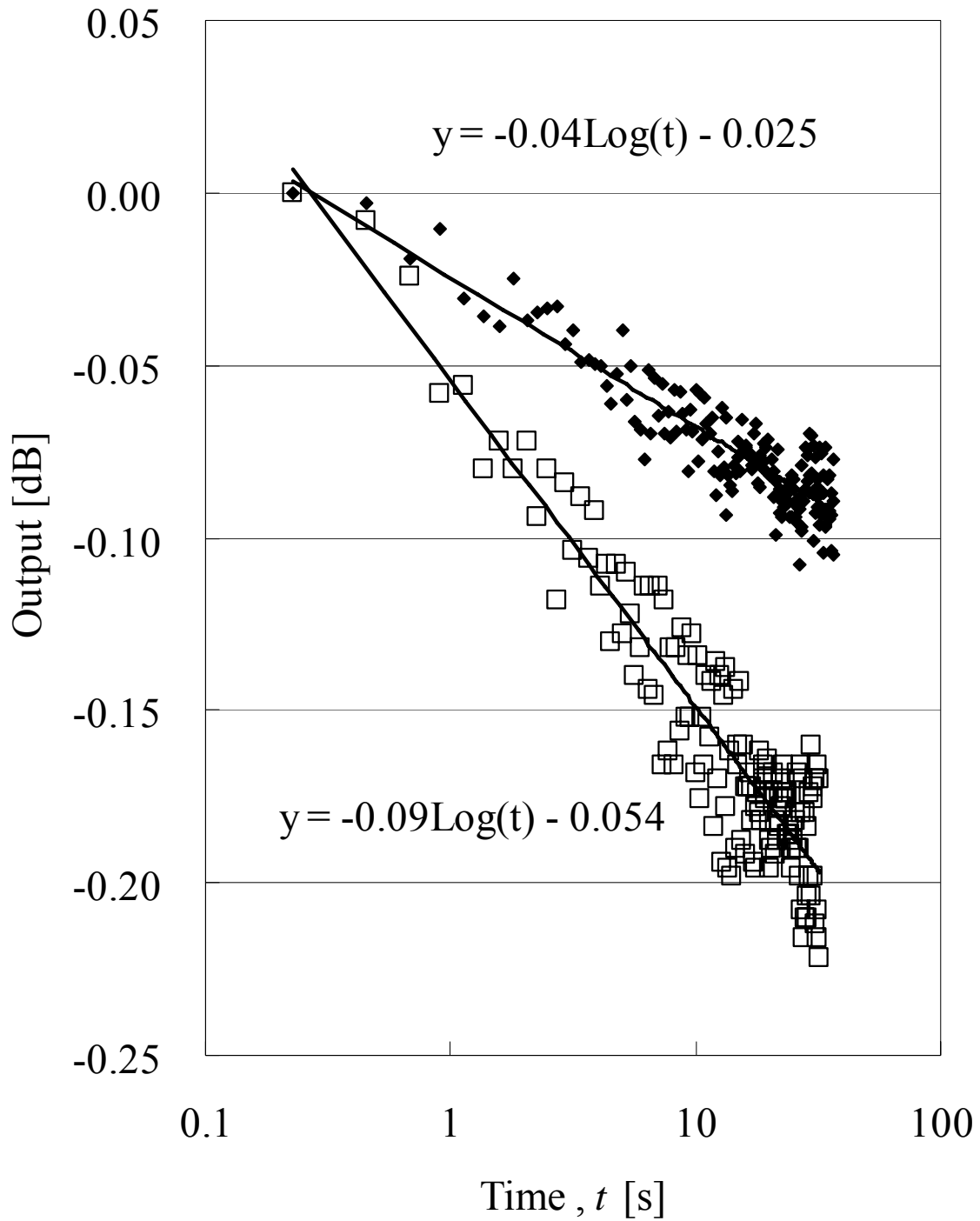


図 3.4.5-2 減衰率の測定例[C18]

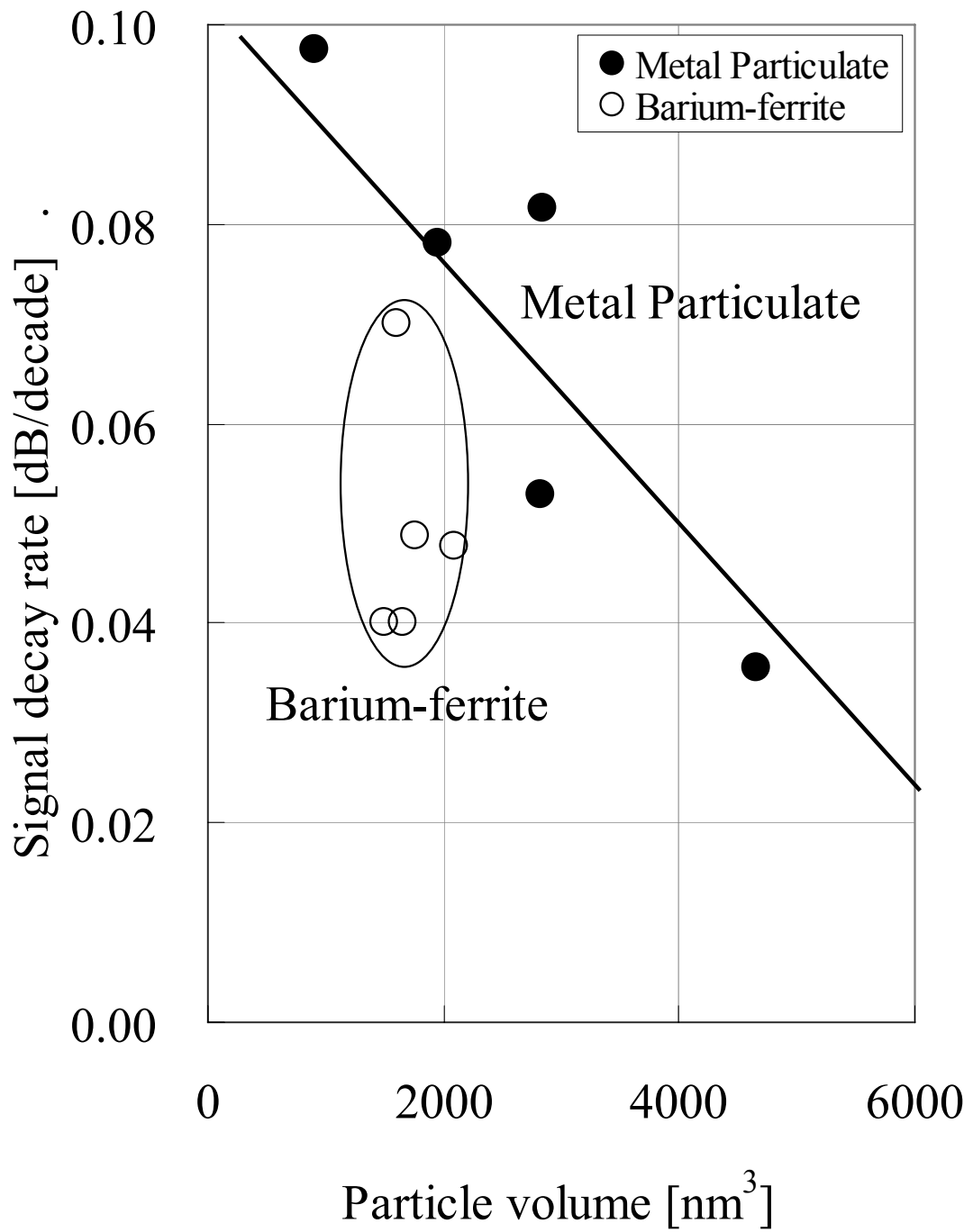


図 3.4.5-3 減衰率と磁性粒子体積の関係[C18]

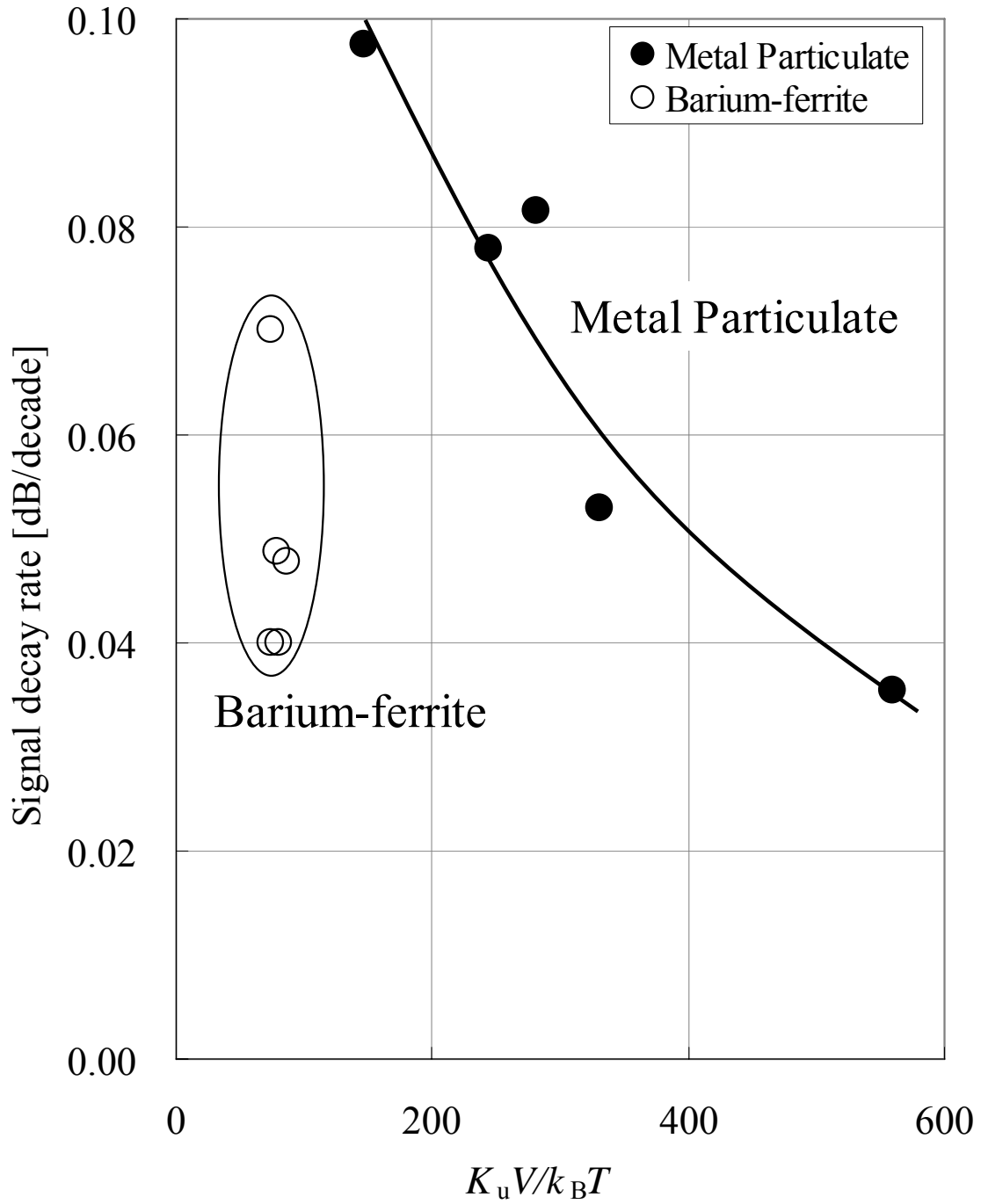


図 3.4.5-4 減衰率と熱揺らぎパラメータの関係[C18]

§ 3.4.6 バリウムフェライト媒体の化学的安定性

前項においては、バリウムフェライト媒体の熱揺らぎに対する安定性について議論してきたが、ストレージ媒体として長期にわたるデータ保管を安全に行う為にはその化学的安定性も重要な要素となる。そこで、本項では、バリウムフェライト媒体の化学的安定性について議論する[C17], [C18].

現在最も利用されている磁気テープはメタルテープであり、メタルテープは長期にわたり磁気テープの中心的役割を果たしている。1985年に利用が開始された放送用メタルテープ MII は 25 年たった現在でも十分利用可能であり、その化学的長期保存安定性は、実際の利用において証明されているといっても良いだろう。今後、新規素材としてバリウムフェライトを用いた磁気テープを市場導入し普及させていくためには、その長期安定性の確認が必須である。もともと酸化物であるバリウムフェライトは比較的安定な化合物であり一般的な温湿度環境テストでは変化しないと想定される。そこで、温湿度環境テストに加えて、加速環境による腐食テストとして、腐食性ガスを用いた Battelle Class II 環境によるテストも行った。これは、Battelle 研究所によって開発された環境テストのひとつ[C38]で、温湿度管理されていない室内環境での腐食を加速していると考えられており、これまでも磁気テープのテストに利用されている[C39], [C40].

(1) 高温高湿及び高温低湿環境での保存による磁気特性の変化

60℃・ドライ、及び 60℃ - 90% の環境に各種体積の磁性体を用いて作製した磁気テープを 30 日間保管して、保管前後での、飽和磁化と保磁力の変化を調べた。図 3.4.6-1 に飽和磁化の変化を、図 3.4.6-2 に保磁力の変化を示す。どちらのグラフも横軸に磁性体の体積をとっている。メタル媒体では、高温高湿である 60℃ - 90% 環境において影響は著しく、磁性体の体積が小さくなるに従って、飽和磁化、保磁力ともに減衰量が大きくなっていくのに対して、バリウムフェライトでは、どちらも、ほとんど変化していない。これは、酸化物であるバリウムフェライトが、高温高湿環境においても影響を受けないのに対して、メタル磁性体は、金属の酸化により、磁気特性が劣化したことの結果であり、微粒子化に伴って、表面積比率が増大し、劣化速度を増大させた結果と考えられる。

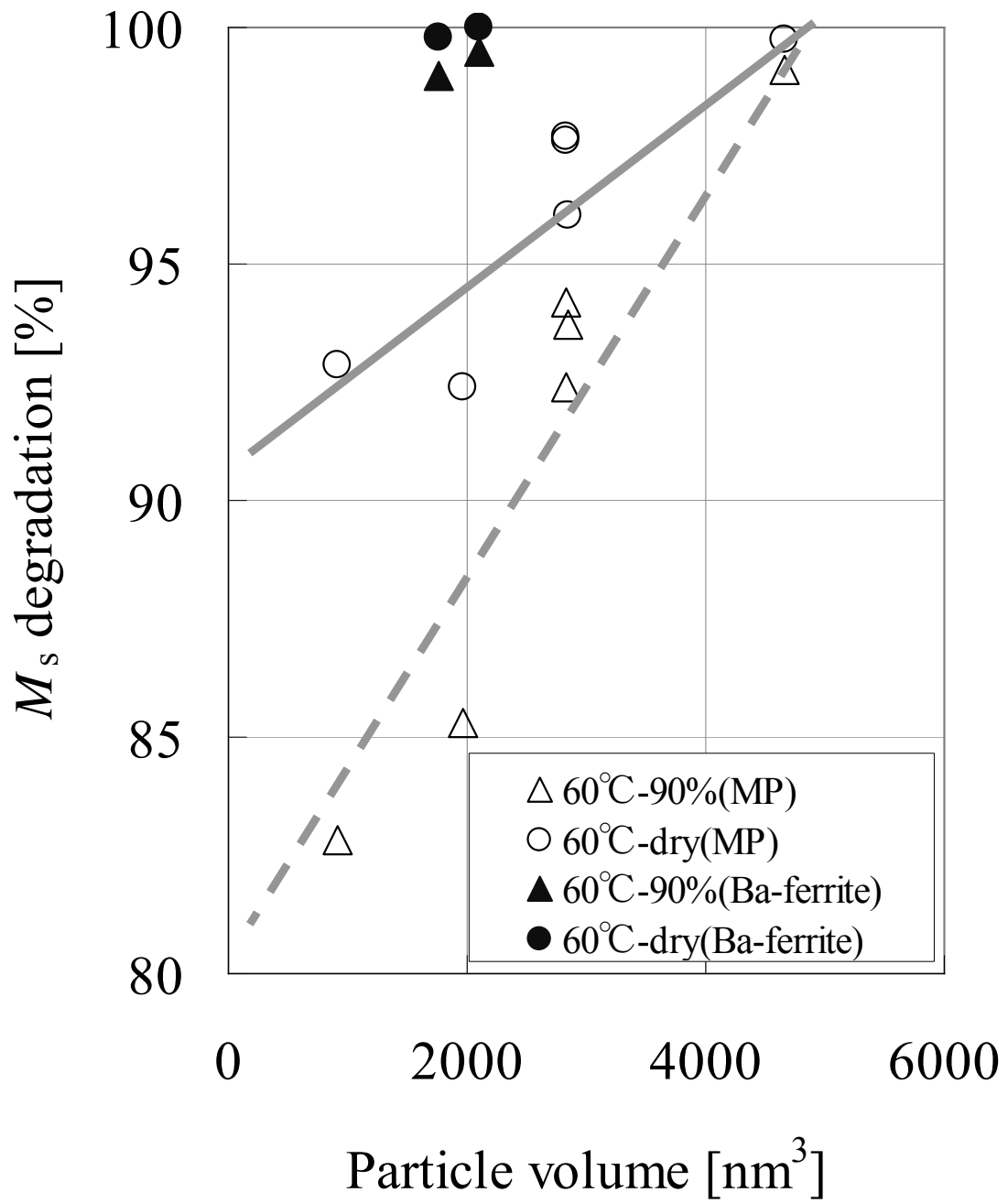


図 3.4.6-1 高温環境 30 日間保管による飽和磁化の変化[C18]

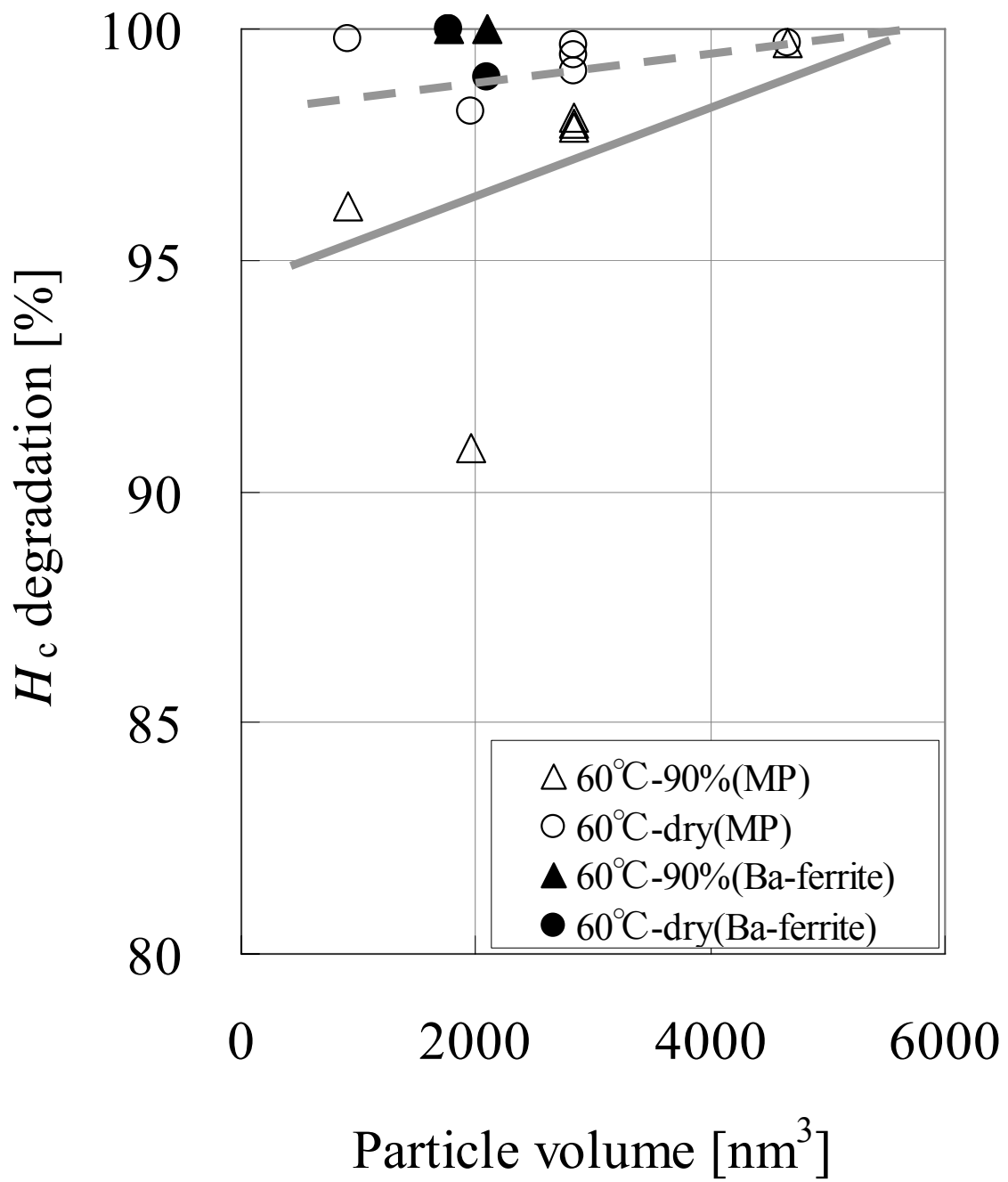


図 3.4.6-2 高温環境 30 日間保管による保磁力の変化[C18]

(2) 腐食性ガス環境下保存による媒体の変化

腐食性ガス環境下におけるテストもメタルテープとの比較で議論する。表 3.4.6-1 にテスト環境 (Battelle Class II 環境) を示す。この環境下にバリウムフェライトテープについては表面を剥き出しにした状態で、メタルテープについては表面を剥き出しにした状態とカートリッジに入れられた状態の二通りで、14 日間放置したが、カートリッジに入れられた状態のテープは保管の前後で全く変化しなかったため、以下の議論は、剥き出しの状態での保管したものについてのみ行う。加速比率については、幾つかの見解があるが、概ね 400~1000 倍である [C41]。従って今回の 14 日間のテストは、15 年~38 年に相当する。まず、テスト前後のテープ表面を微分干渉顕微鏡で撮影した結果を図 3.4.6-3 に示す。通常磁気テープはカートリッジ内で巻かれており、ほとんど外部の大気に接触することがないことを考慮すると、表面を剥き出しにした状態は相当に過酷な環境である。実際、実使用において何ら問題のないメタルテープでも、表面が変化し、腐食した状態が観察されている。

図 3.4.6-4 と図 3.4.6-5 には、Battelle Class II 環境保管前後での、飽和磁化の変化と、保磁力の変化を粒子体積に対してプロットしたものである。体積が約 2000 nm³ のバリウムフェライト媒体の磁気特性がほとんど変化しないのとは対照的に、メタルテープの場合、体積が、10,000 nm³ 以下で急激に、飽和磁化の減衰が確認されている。これら結果はバリウムフェライトテープの化学的安定性が極めて高いことを意味している。但し、カートリッジ内の(リーダテープ直後の)メタルテープは全く腐食せず、テスト前後で磁化量変化も無かった。

表 3.4.6-1 Battelle Class II 環境

Battelle Class II conditions	
Cl ₂ concentration	10 ppb
NO ₂ concentration	200 ppb
H ₂ S concentration	10 ppb
Relative humidity	70 %
Temperature	30 °C

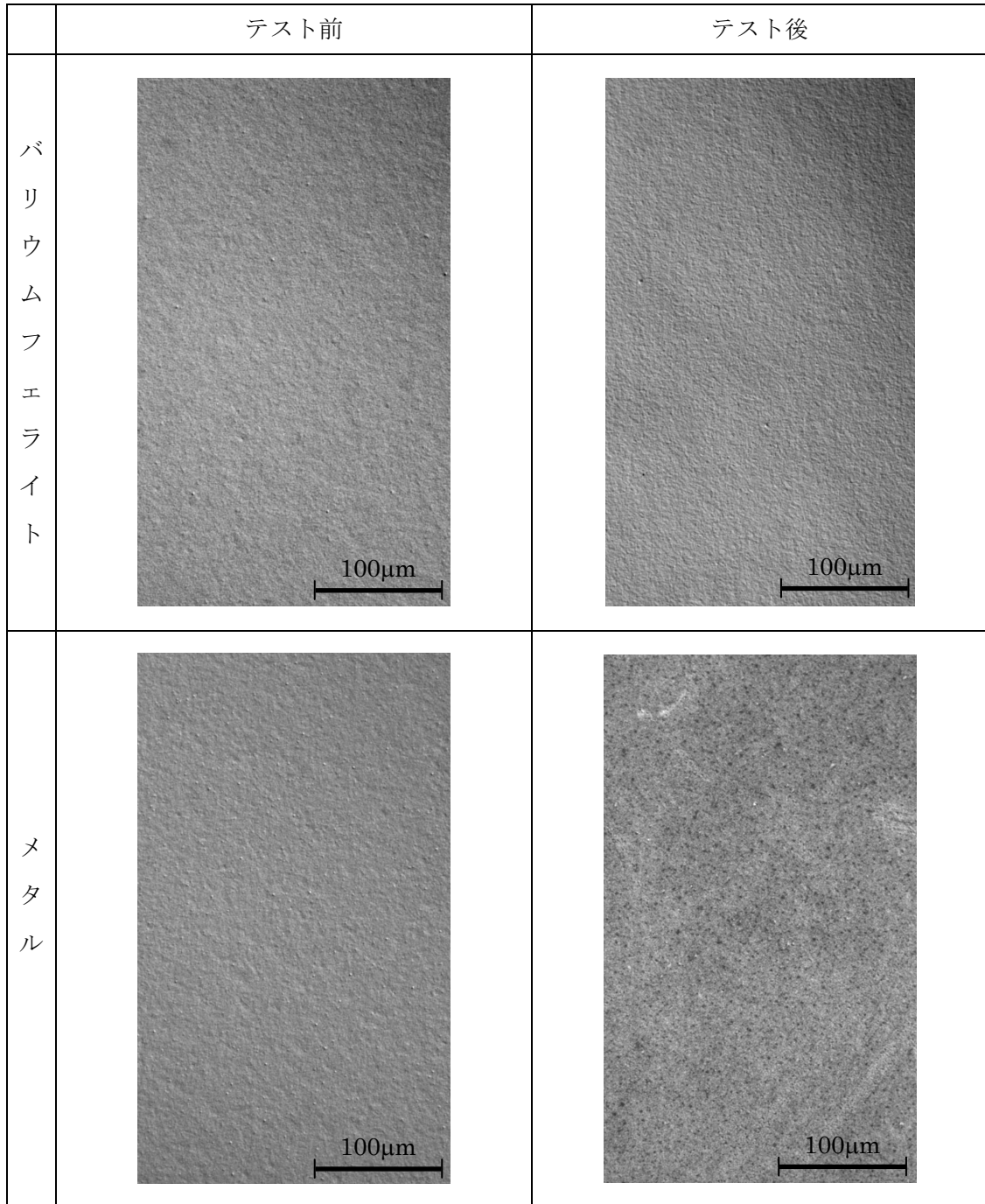


図 3.4.6-3 Battelle Class II 環境に 14 日保管したテープの表面の変化[C17]

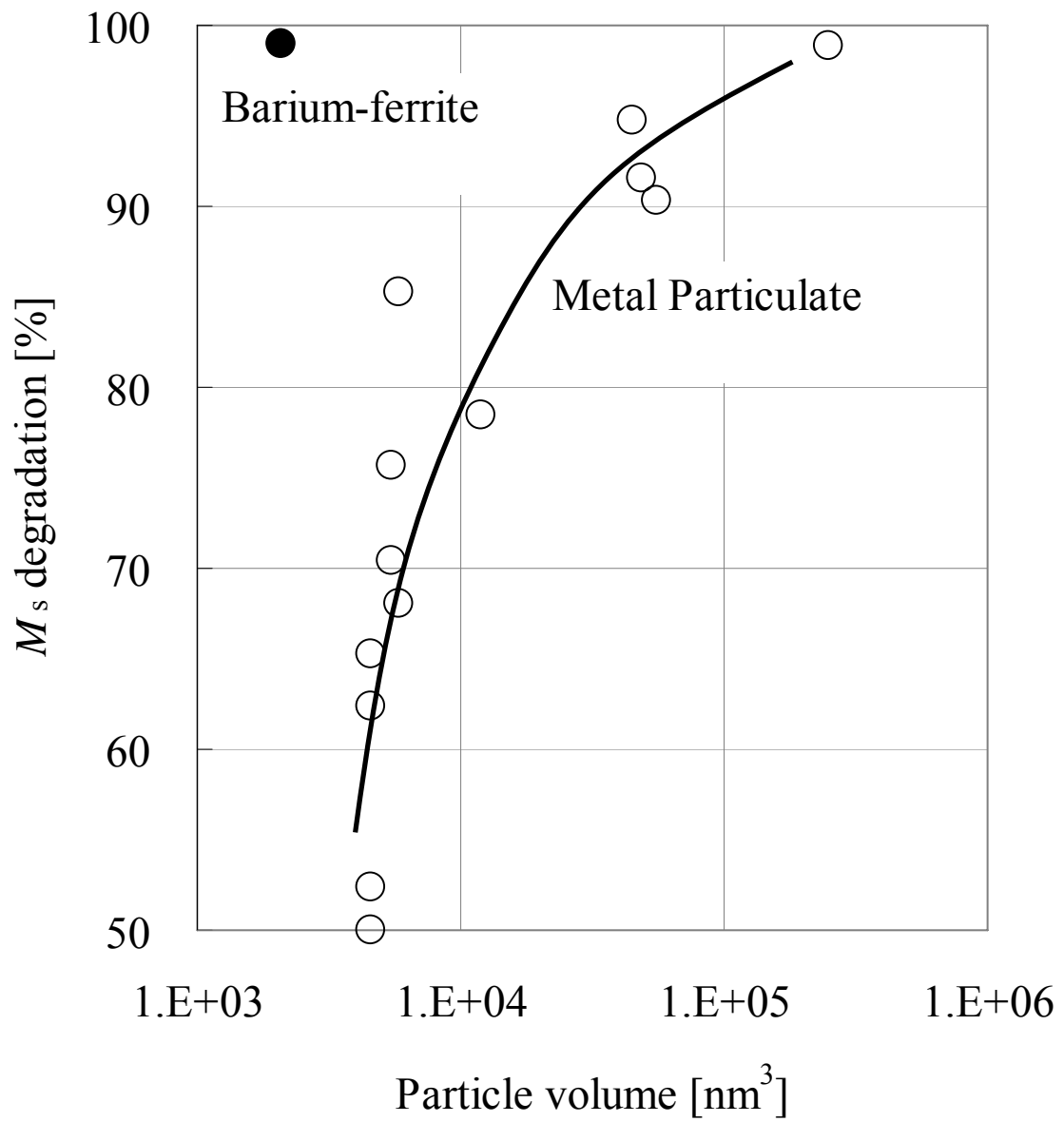


図 3.4.6-4 Battelle Class II 環境下保管による飽和磁化の変化[C18]

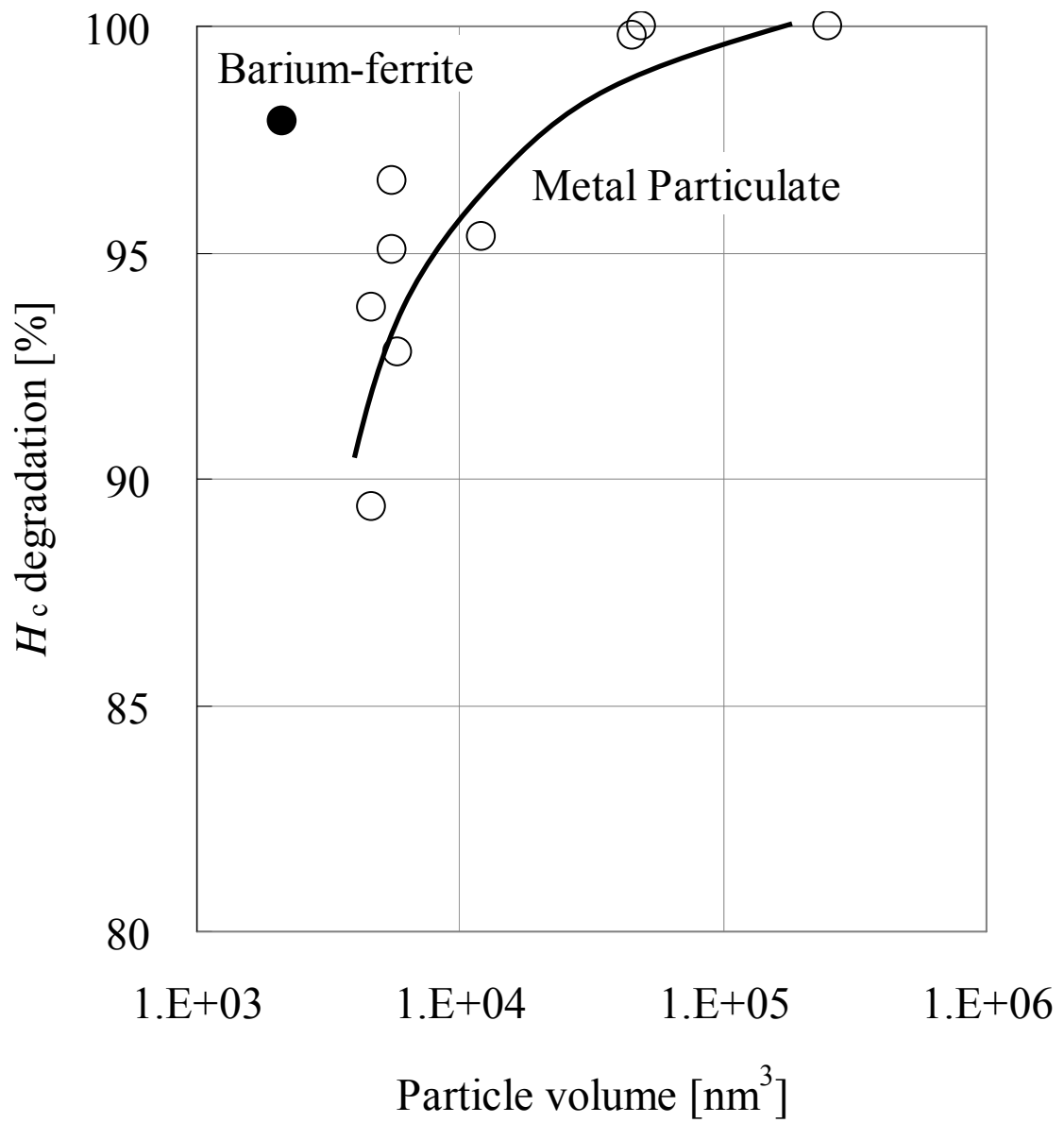


図 3.4.6-5 Battelle Class II 環境下保管による保磁力の変化[C18]

§ 3.4.7 微粒子垂直配向媒体の総合性能評価

本節では、ここまで、塗布型バリウムフェライト媒体の高性能化に関する議論を進めてきた。これらの議論を踏まえ、熱揺らぎに対する安定性も備えつつ、十分に微粒子化されたバリウムフェライト粒子を用いて、垂直配向した媒体を作製し、その性能の総合的評価を、6.7 Gbit/in² 達成を報告されている媒体[C13]との比較で行った[C17]。以下、両者の磁性粒子、媒体、システム性能と議論を進める。本項及び次項では、6.7 Gbit/in² を達成した系を System A、その媒体を Tape A、使用された磁性粒子を Particle A と表記し、今回作製した系を System B、その媒体を Tape B、使用された磁性粒子を Particle B と表記する。

図 3.4.7-1 に、ループテストを用いて、摺動速度 4.1 m/s、再生トラック幅 0.5 μm、シールド間距離 0.12 μm の GMR ヘッドで測定した Tape A 及び Tape B の SNR の線記録密度依存性を示す。この測定における、アンプノイズ及びヘッドノイズは十分に小さく、ここで示すものは媒体の SNR とみなして良い。線記録密度 250~350 kfci(500~700 kbpі に対応) における両媒体の SNR 差は約 3.5 dB 程度である。以下にこの差をもたらしている要因について議論する[C17]。また、次項では、System B によって達成しうる記録密度について議論する[C21]。

(1) Particle A と B の比較

System A で用いられたバリウムフェライト磁性体 Particle A と System B で用いられたバリウムフェライト磁性体 Particle B の比較を表 3.4.7-1 に、また両者の TEM 写真を図 3.4.7-2 に示す。

表 3.4.7-1 磁性粒子の比較

	Particle A	Particle B
Volume, V [nm ³]	2100	1600
Coercivity, H_c [Oe]	2300	2500
σ_s [emu/cm ³]	52	48
$K_u V/k_B T$	87	75

体積 V は透過型電子顕微鏡(TEM)観察結果から板径 D と板厚 t を測定し、六角板状と仮定して、

$$V = \frac{3\sqrt{3}}{8} D^2 t$$

から計算したものである。また、保磁力 H_c と磁化量 σ_s は VSM によって測定した値である。Particle A の平均体積が 2100 nm^3 であるのに対して、Particle B は SNR 向上を目的に微細化しており、Particle A の 76 %、即ち 1600 nm^3 に低減している。§ 3.4.2 で議論したように、体積 1500 nm^3 から 2200 nm^3 の各種体積のバリウムフェライト磁性体粒子を用いて同一条件下でテープを作製し体積と SNR の関係を調査した結果は、粒子性ノイズを前提とした理論値

$$SNR \propto 10 \log(1/V)$$

とよく対応していた。即ち、今回の Particle A から Particle B へと磁性体の体積を 76 % 減少させることによる SNR 向上は 1.2 dB 程度と推定される。

(2) 配向の影響

System A で用いられた媒体 Tape A と System B で用いられた媒体 Tape B の磁気特性の比較を表 3.4.7-2 に示す。

Tape B はテープ製造の乾燥工程でテープの垂直方向に磁界を印加し配向制御を行ったため、垂直方向の角型比 SQ_{ϕ} が 0.86 に達し、逆に長手方向の角型比 SQ_L は 0.22 まで低下している。一方、Tape A では製造時において特に積極的制御は行わなかったが、若干垂直方向の角型比が長手方向の角型比よりも大きくなっている。これは、粒子の形状(板状)の影響で、塗布によって垂直方向に配列しやすくなった効果と考えられる。両者の断面 TEM 像を図 3.4.7-3 に示す。Tape A は粒子の向きがほとんどランダムなのに対して、Tape B は、多くの粒子で板面が摺動面と平行に配列し、その結果、粒子の横断面のみが観察されており、容易軸(板面に垂直方向)が垂直方向に配向しているのがわかる。

§ 3.4.3 で議論したように、ランダム配向から垂直配向への変化は SNR の向上をもたらす。図 3.4.7-4 は、§ 3.4.3 の結果をもとに、配向度と SNR の関係をプロットしたものである。横軸は、垂直配向の程度を表すパラメータとして、垂直方向の角型比 SQ_P と長手方向の角型比 SQ_L の差 ($SQ_P - SQ_L$) を取り、縦軸に SNR のシミュレーション結果をプロットしたものである。表 3.4.7-2 に示す通り、Tape A は $SQ_P - SQ_L = 0.30$ であり、Tape B は $SQ_P - SQ_L = 0.64$ である。このシミュレーション結果より、この配向差によって得られた SNR の向上は +2 dB 程度と推定される。

表 3.4.7-2 Tape A と Tape B の磁気特性の比較

	Tape A	Tape B
Perpendicular direction		
Coercivity H_{CP} [Oe]	2700	2900
Squareness ratio SQ_P	0.69	0.86
Longitudinal direction		
Coercivity H_{CL} [Oe]	2000	1500
Squareness ratio SQ_L	0.39	0.22
$SQ_P - SQ_L$	0.30	0.64

(3) 表面性及び摺動性能

リニアテープシステムで高記録密度を実現するためには、トラッキング性能は極めて重要であり、高トラック密度化のためには、摺動特性の向上は必須である。一般に、摺動面形状を粗面化することで、摺動特性の改善は可能であるが、この場合、スペーシングロスの増大を招くことになる。ここでは、スペーシングロスの増大を回避しつつ、ヘッド・テープ間の摺動摩擦の低減を図ることを試みた。図 3.4.7-5 に Tape B で目指した面形状の概念図を Tape A との比較で示す。Tape A の面が比較的大きな周期のウネリで粗面化しているのに対して、Tape B では、ウネリのない面に無数の微小突起を形

成し，スペーシングの増大を招くことなく摺動特性の改善を試みた。

Tape A 及び Tape B の表面形状を光干渉型表面形状粗さ計(Optical Interferometric Profiler : OIP)と原子間力顕微鏡(Atomic Force Microscope : AFM)によって測定した平均表面粗さ R_a と十点平均粗さ R_z を表 3.4.7-3 に，またそれぞれのプロファイルを図 3.4.7-6 及び図 3.4.7-7 に示す。

表 3.4.7-3 光干渉型表面形状粗さ計(OIP)及び原子間力顕微鏡(AFM)で測定した表面粗さ

	Tape A	Tape B
Optical Interferometric Profiler (OIP)		
R_a [nm]	2.1	0.7
R_z [nm]	23	7
Atomic Force Microscope (AFM)		
R_a [nm]	2.0	2.1
R_z [nm]	39	32

OIP による測定は， $180\ \mu\text{m} \times 240\ \mu\text{m}$ の比較的大きな面積を測定したもので，広い領域のウネリを表すものであるが，サブミクロン以下の分解能は無いため，小さな突起は測定されていない。一方，AFM による測定は $40\ \mu\text{m} \times 40\ \mu\text{m}$ の領域を測定したもので，微小突起が測定可能であるが，広い領域での変化は測定できない。表 3.4.7-3 の数字で比較すると，OIP の測定結果からは Tape B に比較して Tape A の粗さが目立つ結果となっているが，AFM の結果は同等の R_a となっている。これに対応し，図 3.4.7-6 の OIP プロファイルは，Tape B の平滑さが際立つ結果となっている一方で，図 3.4.7-7 の AFM プロファイルを見ると，Tape A と比較して，Tape B は，非常に多数の微小突起によって粗面化されていることが分かる。即ち，Tape B はウネリの無い面にたくさんの微小突起が形成されており，この面形状によって，摺動特性の大幅な改善を実現している。図 3.4.7-3 の TEM 像では，この微小突起は確認されていない。これは，この微小突起の面密度が，数平方ミクロンに 1 個程度であり，局所的な TEM 観察に現れてい

ないためである。

図 3.4.7-8 には, Tape A 及び Tape B の摺動テストの結果を示す. これは, 100 gf の荷重をかけて, 速度 14 mm/s という低速領域で, 直径 3 mm の $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-TiC}$ 部材に対し 180 度(π rad)巻きつけで, 45 mm の長さを往復摺動させた時の歪ゲージにかかった負荷 x gf の変化を,

$$\mu = \frac{1}{\pi} \ln \left(\frac{x}{100} \right)$$

で摩擦係数に換算した値をパス回数に対してプロットしたものである(図 3.4.7-8 では 50 パスから 100 パスまでを示している). 通常の摺動状態であれば, 引っ張り摺動時は歪ゲージに印加される負荷 x は荷重 100 gf に摺動負荷が加わり 100 gf 以上の値となり, 上式で換算された値は正の値を, 戻り時は摺動負荷が差し引かれるので負の値になるが, ここでは正の値のみをプロットしている. Tape A の摩擦係数はかなり高く, 0.5 に近い値を示しているのに対して, Tape B では摺動を繰り返しても 0.25 程度を維持している. また, Tape A では, 図中 Stiction events と示す 6 箇所不連続な負荷変動が観察されている. これは, 戻り摺動時に張り付きが発生し, 戻り動作中にこの張り付きが開放され, 荷重の落下に伴い急激な負荷上昇が発生した場所である. 一方 Tape B では全てのパスで定常の摩擦挙動が観察されており, 張り付きの発生はなく, 安定した走行が実現していることが分かる. 最も簡単な摩擦係数の低減方法は媒体の摺動面を粗面化することである. しかし, この場合, 必ずスペーシングの増大を招く. Tape B では, 微小突起による粗面化と長周期のウネリを除去することを同時に実現し, ヘッドと媒体間のスペーシングの増大を招くことなく摩擦係数の低減を目指したものである. 図 3.4.7-1 の線記録密度特性からわかるように Tape A と Tape B の高線記録密度領域での応答はほぼ平行移動であり, また, 両者の磁性層厚が図 3.4.7-3 の TEM 像から明らかのように, 共に 70 nm 程度と同一であることを考慮すれば, Tape A と Tape B のスペーシングに大きな差がないことが推察される. 実際, 出力の波長特性から, 実効的スペーシング (磁気的スペーシング: d と遷移幅パラメータ: a の和 $d+a$) を Murata 等の方法[C42]で見積もった]. その結果, Tape A の $d+a$ は 30.3 nm, Tape B は 28.7 nm と, むしろ若干ではあるが, Tape B が Tape A よりも小さい値を示した. つまり, Tape B の表面形状は, スペーシングの増大を招くことなく, 摺動特性の大幅な改善を実現していると言える.

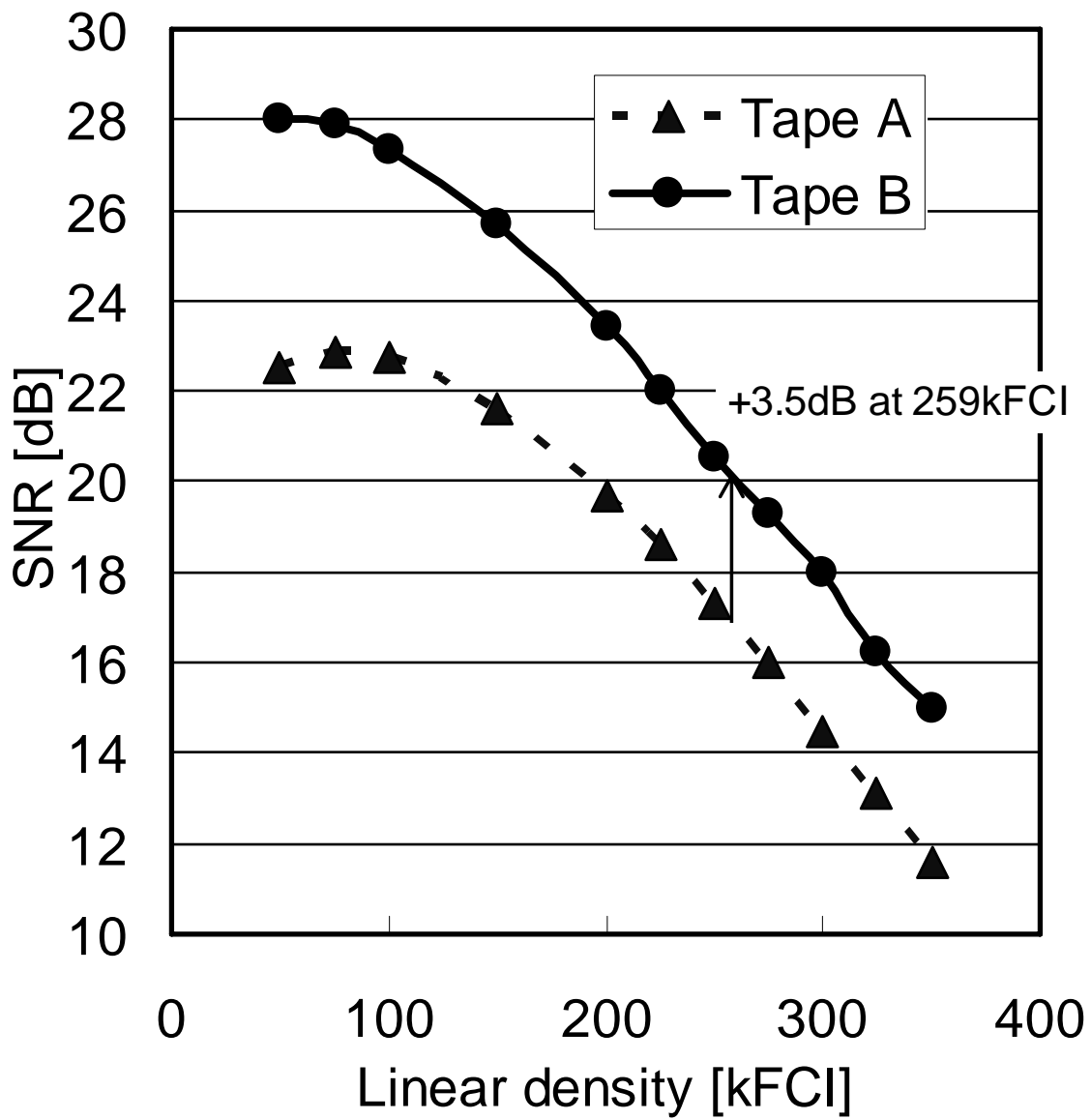


図 3.4.7-1 Tape A と Tape B の SNR の記録密度依存性[C17]

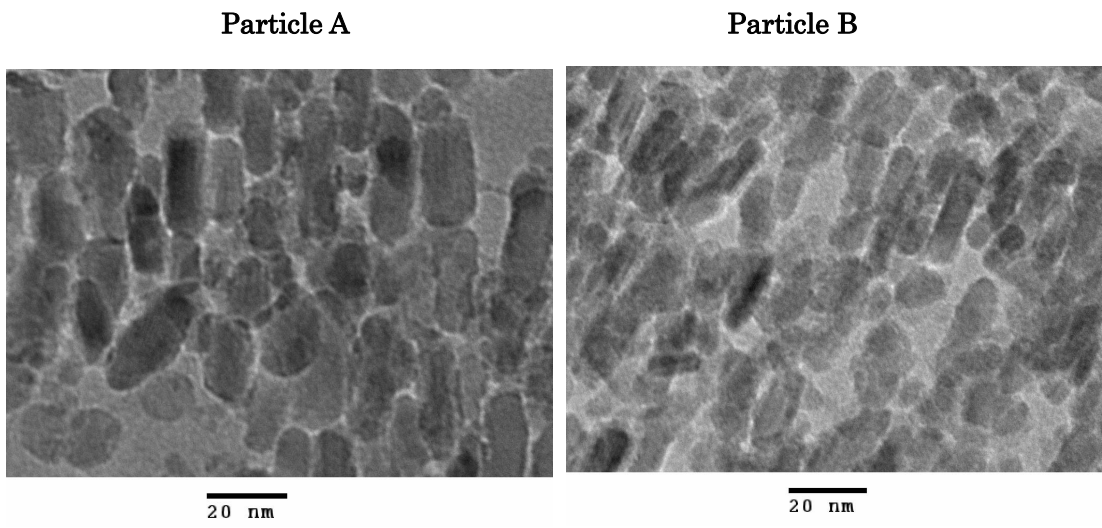


図 3.4.7-2 磁性粒子の TEM 写真

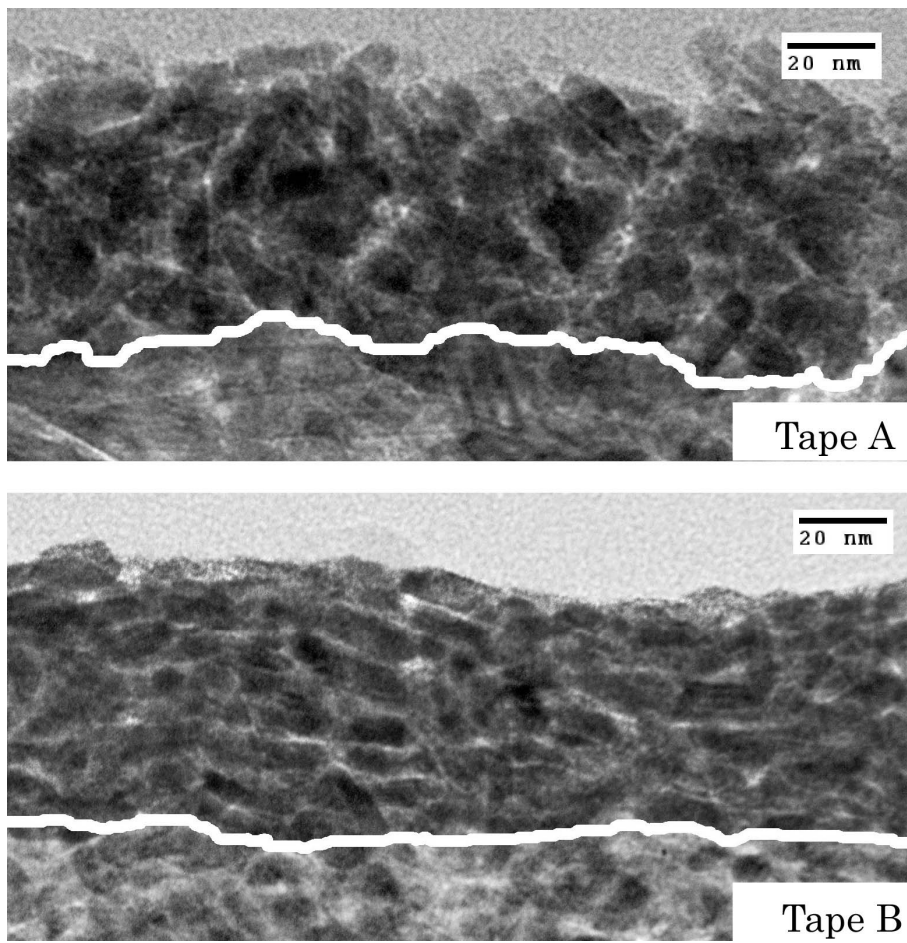


図 3.4.7-3 Tape 断面の TEM 写真[C17]

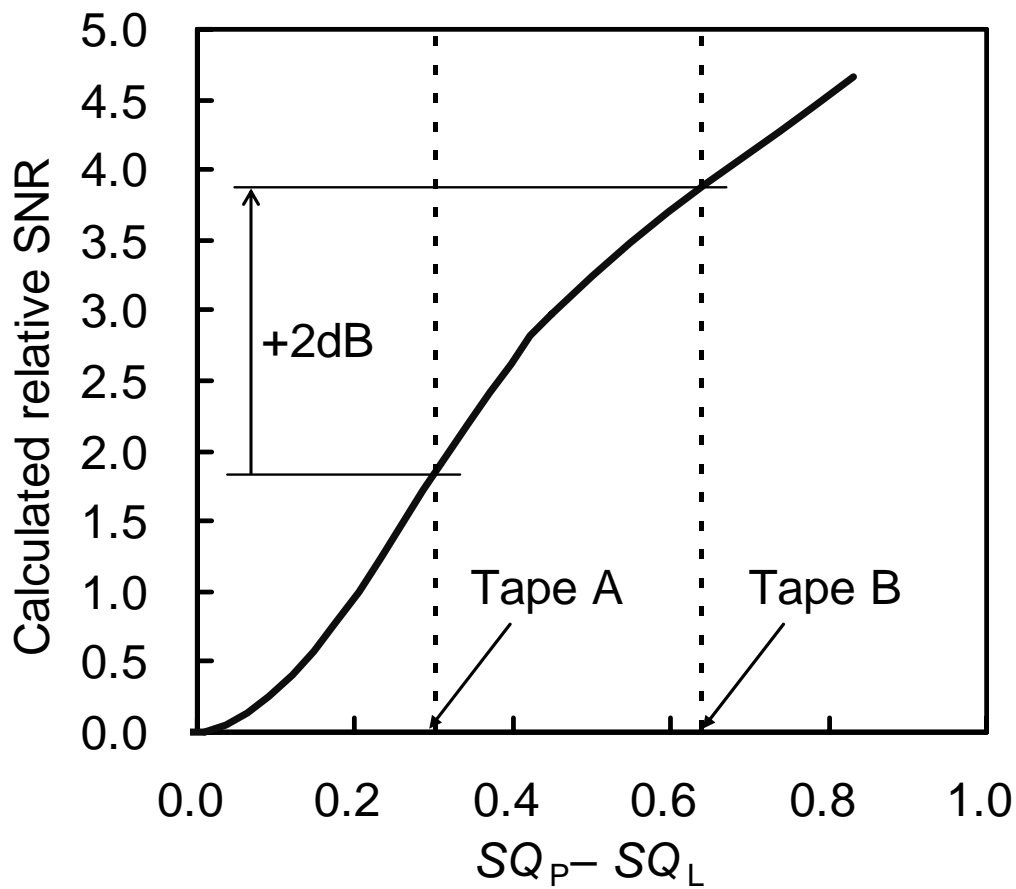


図 3.4.7-4 配向度と SNR の関係[C17]

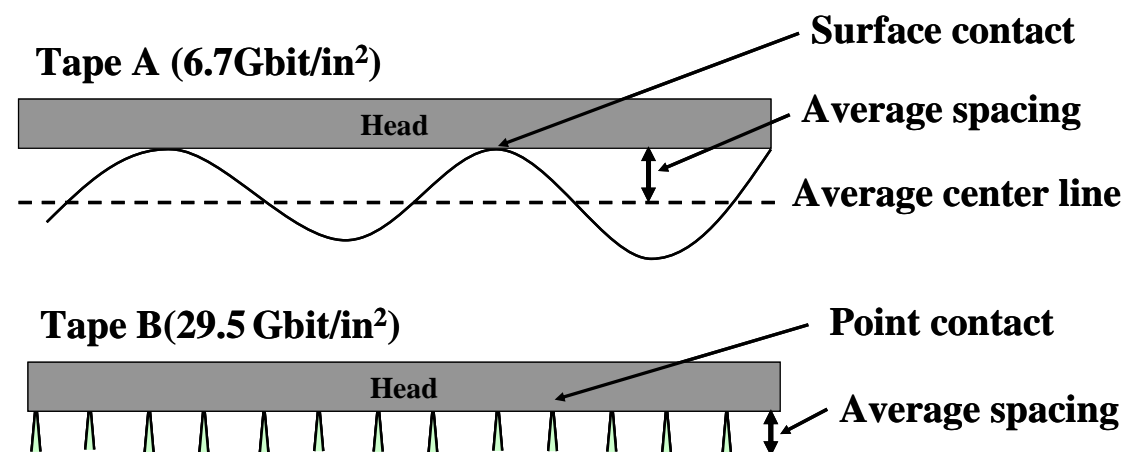


図 3.4.7-5 表面形状の概念図

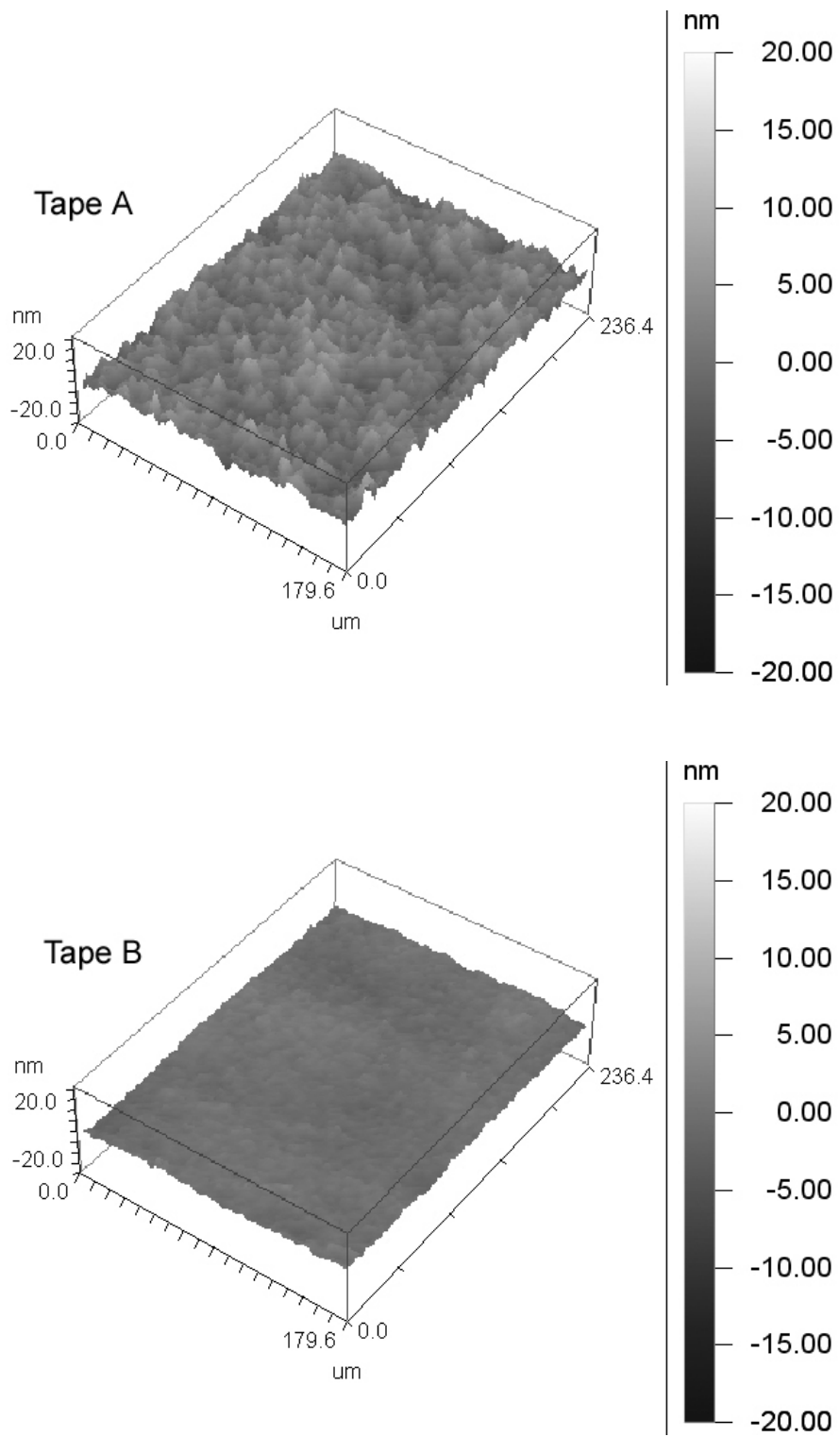


図 3.4.7-6 光干渉型表面形状粗さ計による表面形状の比較[C17]

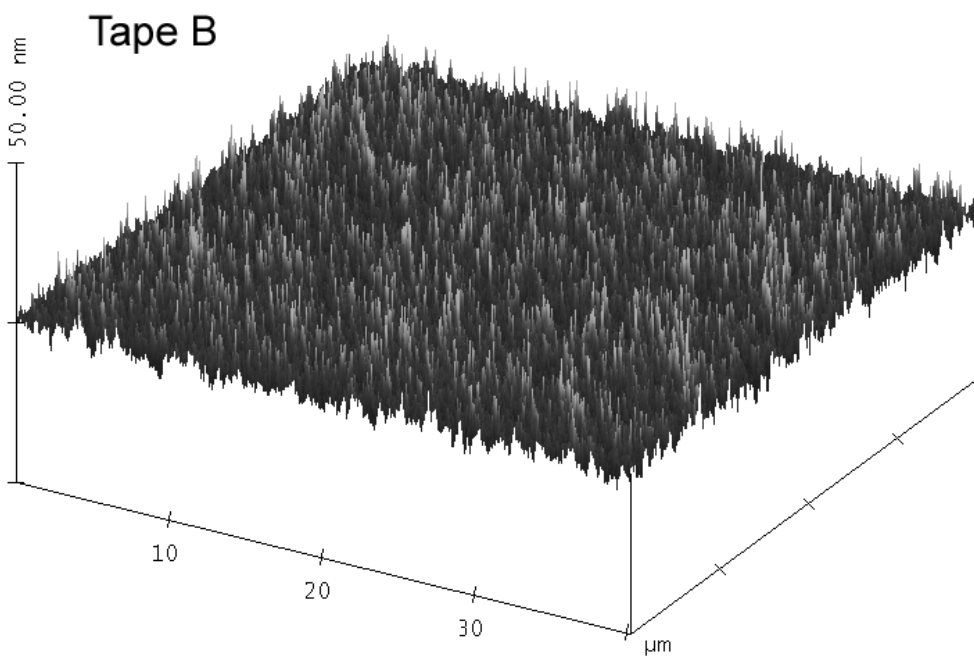
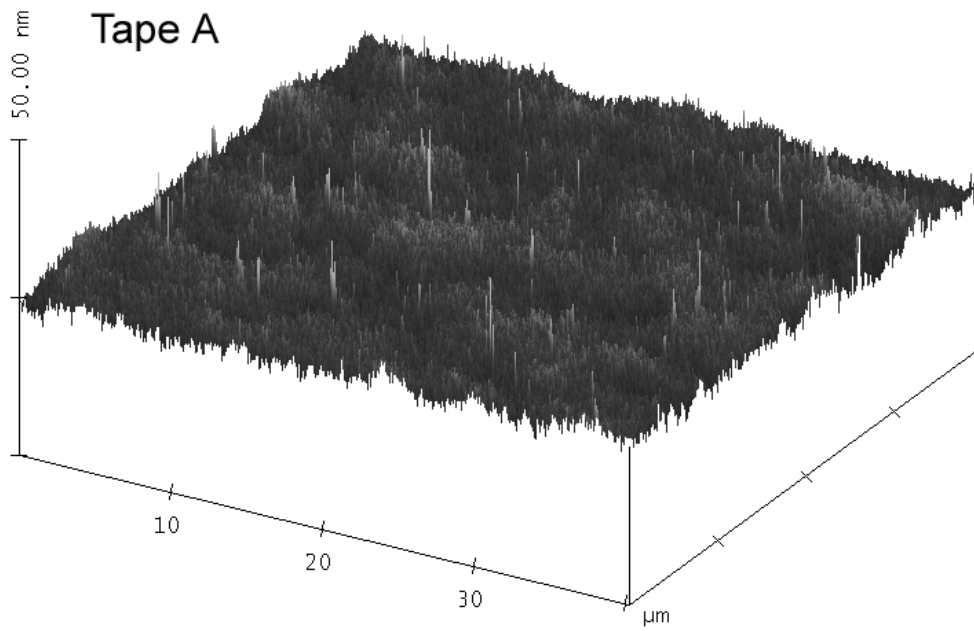


図 3.4.7-7 原子間力顕微鏡による表面形状の比較[C17]

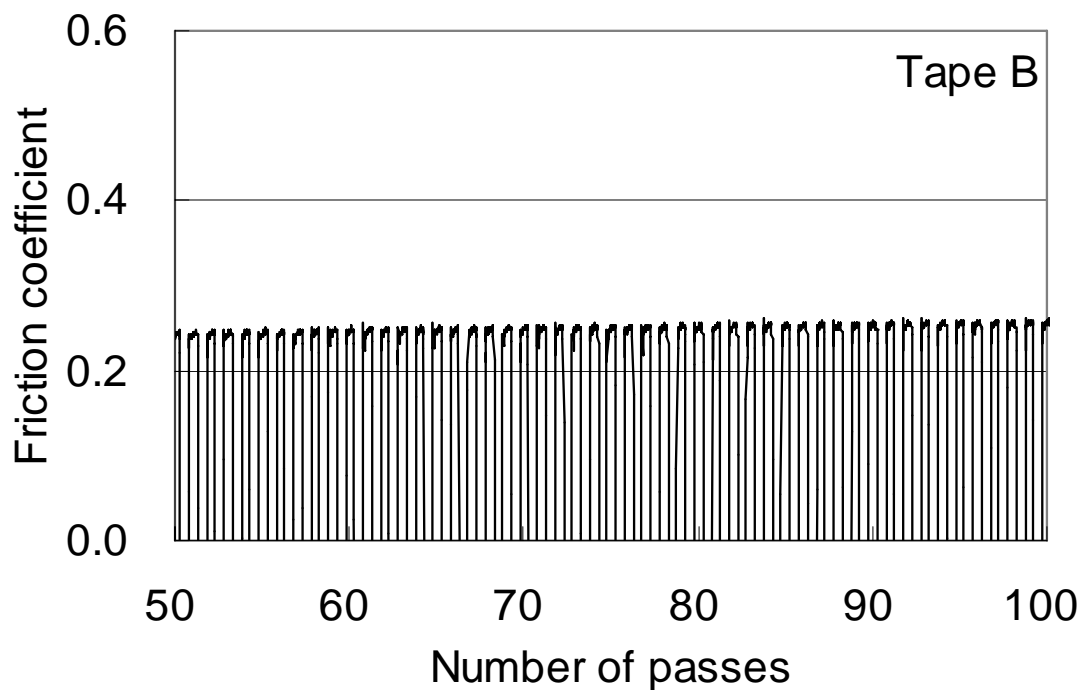
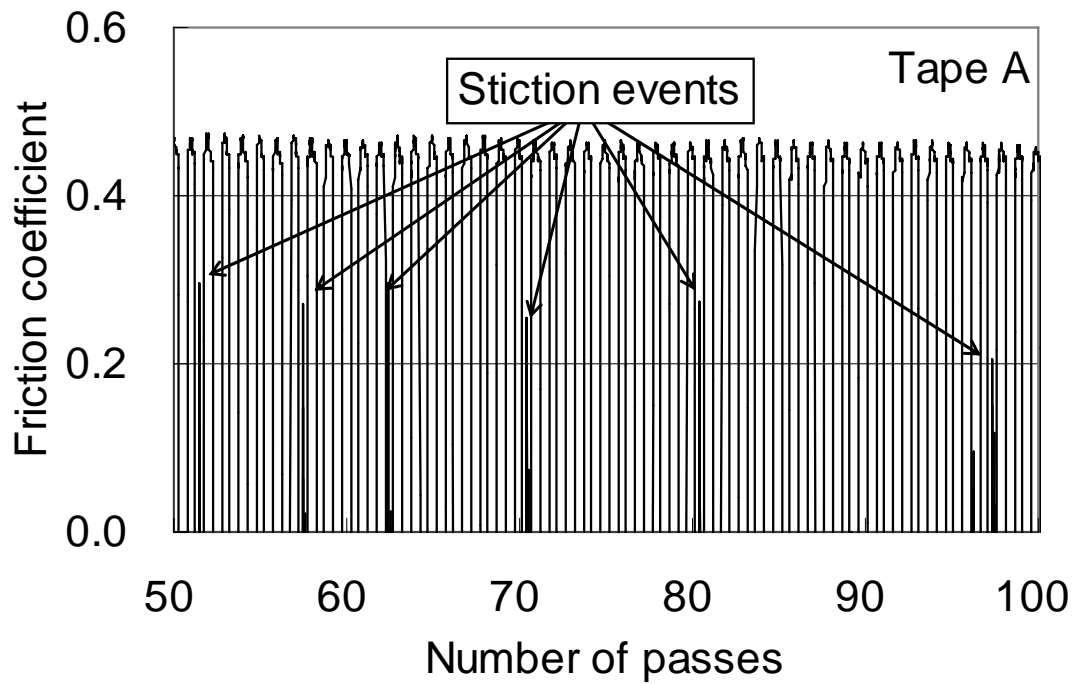


図 3.4.7-8 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-TiC}$ 部材との摺動特性比較[C17]

§ 3.4.8 面記録密度性能の見積り

前項では、面記録密度 6.7 Gbit/in² を達成した System A に用いた Tape A と、微粒子化し、垂直配向した Tape B の媒体単体での性能について議論してきた。ここでは、Tape B で達成しうる面記録密度性能について議論する[C21]。

一般にリニアテープシステムの面記録密度は、HDD の面記録密度と比較して著しく低い。この原因の一つは、リニアテープシステムでは、トラック位置再現性が HDD と比べて低く、その結果として、ビット形状、即ち、ビット長とビット幅の比(BAR : bit aspect ratio)を大きくとらざるを得ないことにある。近年の HDD で実現されている BAR は 6:1 程度である[C43]のに対して、リニアテープシステムとして、2010 年にリリースされた LTO-5 は、1.2 Gbit/in² を達成しているが、BAR は 123:1 である[C44]。6.7 Gbit/in² を達成した System A でさえ、BAR は 24:1[C13]であり、面記録密度向上のためには、一層の高トラック密度化が重要である。

(1) トラッキングサーボ性能

トラッキングサーボ性能の向上には、テープ・ヘッド間の摺動性能の向上が重要である。一般に、低周波数での位置変動であれば、アクチュエータが追随可能で、トラッキング性能には大きく影響しない。しかし、ヘッド・テープ摺動に伴い、kHz オーダーの高周波で、ヘッド・テープの相対位置関係が変動するとアクチュエータでの追随が困難になり、位置誤差となってトラッキング性能を低下させる。リニアテープシステムでは、走行中の位置誤差を検出し、その誤差を低下させるべくアクチュエータがヘッド位置を制御する。最終的に補正できない位置誤差によって、トラッキングに必要なマージンが決定され、結果としてトラック密度が決定される。リニアテープシステムで用いられているトラック位置検出方式については、付録 A を参照されたい。

図 3.4.8-1(a)は、Tape B の走行中のトラック位置誤差信号(PES : Position Error Signal)をサンプリング周波数 40 kHz、即ち周期 25 μ s で測定したものをプロットしたものである。概ね $\pm 0.1 \mu$ m のレンジで変動している。図 3.4.8-1(b)は、PES の測定値の累積分布関数(CDF)である。図中の直線は、CDF が 0.999 になる点を示している。即ち、99.9% の PES は、87 nm 以下($CDF_{99.9} = 87$)の値をとっていることが分かる。International Storage Industry Consortium (INSIC) によれば、トラッキングマージン T_M は、

$$T_M = 2\sqrt{2} \times CDF_{99.9}$$

は必要とのことである[C45]. この式の最初の係数 2 はトラックの両サイドを, $\sqrt{2}$ は記録時と再生時に対応している. 即ち, Tape B の場合, 必要なマージンは

$$T_M = 0.246 [\mu\text{m}]$$

であり, これに, 必要な再生トラック幅 R_w を加えたものが, トラックピッチ T_p となる. 磁気記録においては, 再生トラック幅を半分しても, SNR の劣化は, 高々 3 dB 程度であるが, 線記録密度は, スペーシングの影響で, 急激に劣化する波長がある. その観点では, トラック密度を高くして, 線記録密度は比較的lowめに抑えることが面記録密度向上に有効であるが, 再生トラック幅をトラックマージンに比べて著しく小さくしてもトラック密度の向上は小さい. そこで, 再生トラック幅 $R_w = 0.2 \mu\text{m}$ の GMR ヘッドを用いることとし, トラックピッチ $T_p = 0.446 \mu\text{m}$ とした.

(2) 線記録密度

ここまで議論してきたように, Tape B では, 再生トラック幅 $0.2 \mu\text{m}$ のヘッドを用いれば, トラックピッチ $0.446 \mu\text{m}$ が実現可能である. そこで, 表 3.4.8-1 のヘッドを用いて, エラーレートの線記録密度依存性を評価した. エラーレート評価の詳細については, § 3.4.2 で議論した方法を用いたが, 実用的観点から状態数は 16 とした(16-state の DD-NPML). 図 3.4.8-2 に結果を示す. この結果より, ビットエラーレート 10^{-4} を達成しうる線記録密度は 518 kbpI と内挿される.

表 3.4.8-1 ヘッド仕様

Read element		Write element	
Type	GMR	Type	Thin film
Shield to shield spacing	0.08 μm	Saturation flux density	18 kG
Read track width	0.2 μm	Gap length	0.17 μm

(3) 面記録密度

ここに示してきたように、体積 1600 nm^3 のバリウムフェライト磁性体を垂直配向させた塗布型媒体 Tape B を用いて、再生トラック幅 $0.2 \text{ }\mu\text{m}$ の GMR ヘッドで、 518 kbp i の線記録密度まで、エラーレート 10^{-4} 以下を達成しうることを確認した。 10^{-4} というエラーレートは、その後、直交リードソロモンなどのエラー訂正を行う通常のリニアテープシステムとして十分なエラーレートである。一方、このテープを実際に走行させたときの、PES を測定し、この時必要なトラックマージンを求めたところ、 $0.246 \text{ }\mu\text{m}$ であった。このことから、必要なトラックピッチは、 $0.446 \text{ }\mu\text{m}$ となり、トラック密度は、 57 ktp i となる。これらのことより、面記録密度は $518 \times 57 \text{ Mbit/in}^2 = 29.5 \text{ Gbit/in}^2$ を達成したことになる。また、この時の BAR(Bit Aspect Ratio)は、9 を達成したことになる。 6.7 Gbit/in^2 を達成した System A と 29.5 Gbit/in^2 を達成した System B の比較を表 3.4.8-2 に示す。

表 3.4.8-2 System A と System B の比較

	System A	System B	ratio
Linear density [kbp <i>i</i>]	400	518	1.3
Track density [ktp <i>i</i>]	17	57	3.4
Reader width [μm]	0.5	0.2	1/2.5
Track margin [μm]	1.0	0.25	1/4
Areal density [Gbit/in^2]	6.7	29.5	4.4
Channel	32-state- DD-NPML	16-state- DD-NPML	—

System A では、線記録密度 400 kbp_i、トラック密度 17 ktp_i で 6.7 Gbit/in² を達成していたが、System B では線記録密度で 1.3 倍の 518 kbp_i、トラック密度で 3.4 倍の 57 ktp_i を実現し、面記録密度として 4.4 倍の 29.5 Gbit/in² を達成している。この、トラック密度の向上には、電磁変換特性の向上に伴う再生トラック幅の低減のみではなく、トラックマージンの低減効果(1/4)の寄与も大きい。電磁変換特性の向上による分は、線記録密度 1.3 倍と再生トラック幅 1/2.5 即ち、記録ビットサイズで 1/3.25 である。

図 3.4.7-1 示したように、Tape A と Tape B の SNR の差は、線記録密度 259 kfc_i (518 kbp_i に対応) において、約 3.5 dB である。記録ビットサイズ 1/3.25 の達成はこの媒体性能差 3.5 dB とヘッド性能の向上の結果達成したものである。厳密には、System A で用いた channel が 32-state DD-NPML (data-dependent noise-predictive maximum-likelihood) 検出であったが、System B で用いた channel は、実装上より現実的な 16-state DD-NPML である。この channel の差も System B の電磁変換特性向上によって補われていると考えられる。ここで、もし必要なトラックマージンの低減がなく、System A と System B で同一であり、System B でも 1 μm のトラックマージンが必要であると仮定すると、System B で達成できるトラックピッチは、System B の再生トラック幅の 0.2 μm と System A のトラックマージン 1.0 μm の和の 1.2 μm (21 ktp_i) であり、達成しうる面記録密度は高々 11 Gbit/in² 程度になってしまう。このトラックマージンの改善は、トラッキングを行うアクチュエータの高性能化の寄与もあるが、媒体とヘッドの走行性改善による効果も非常に大きい。

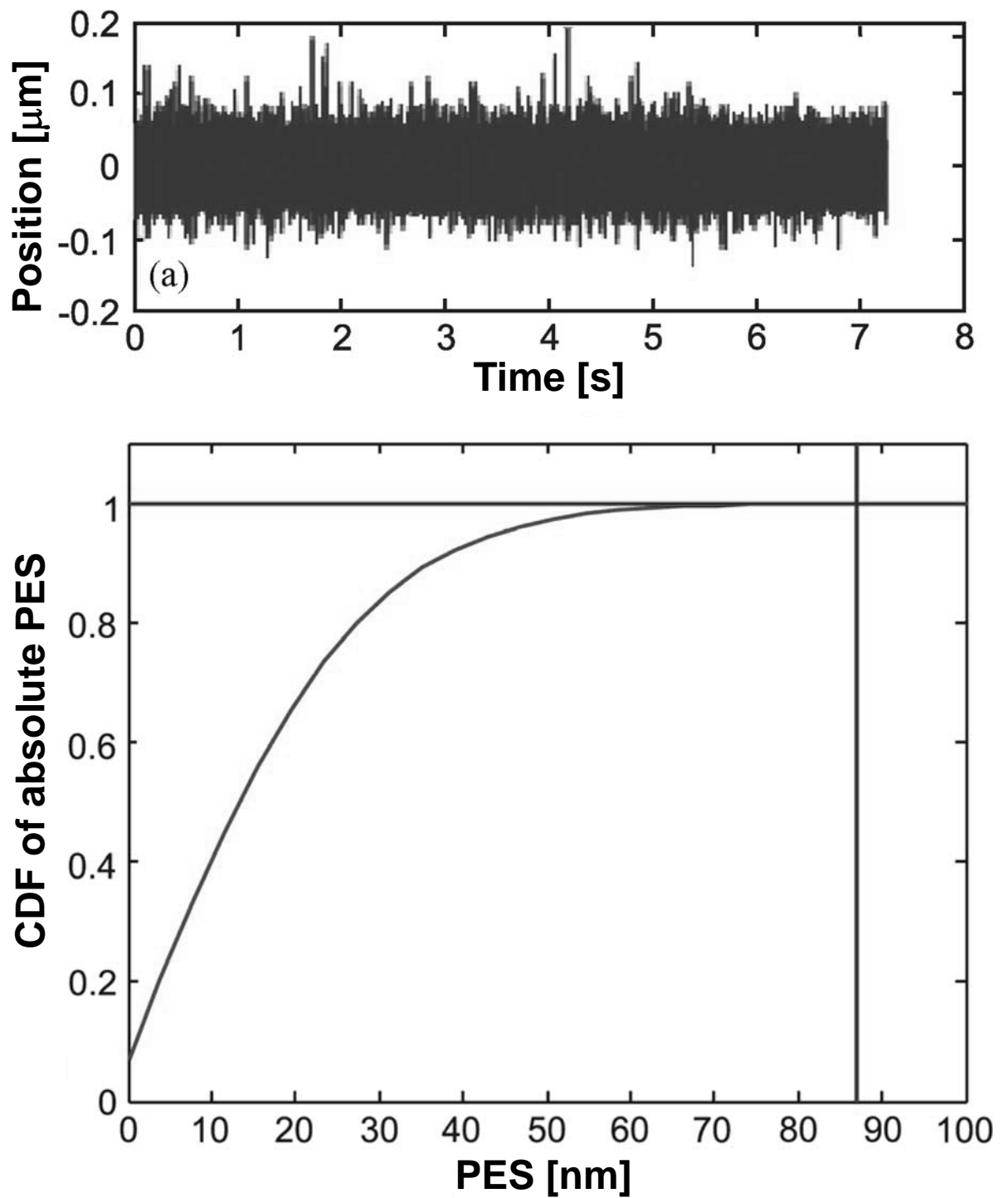


図 3.4.8-1 (a) PES 変動及び(b)PES の絶対値の累積密度関数(CDF)[C21]

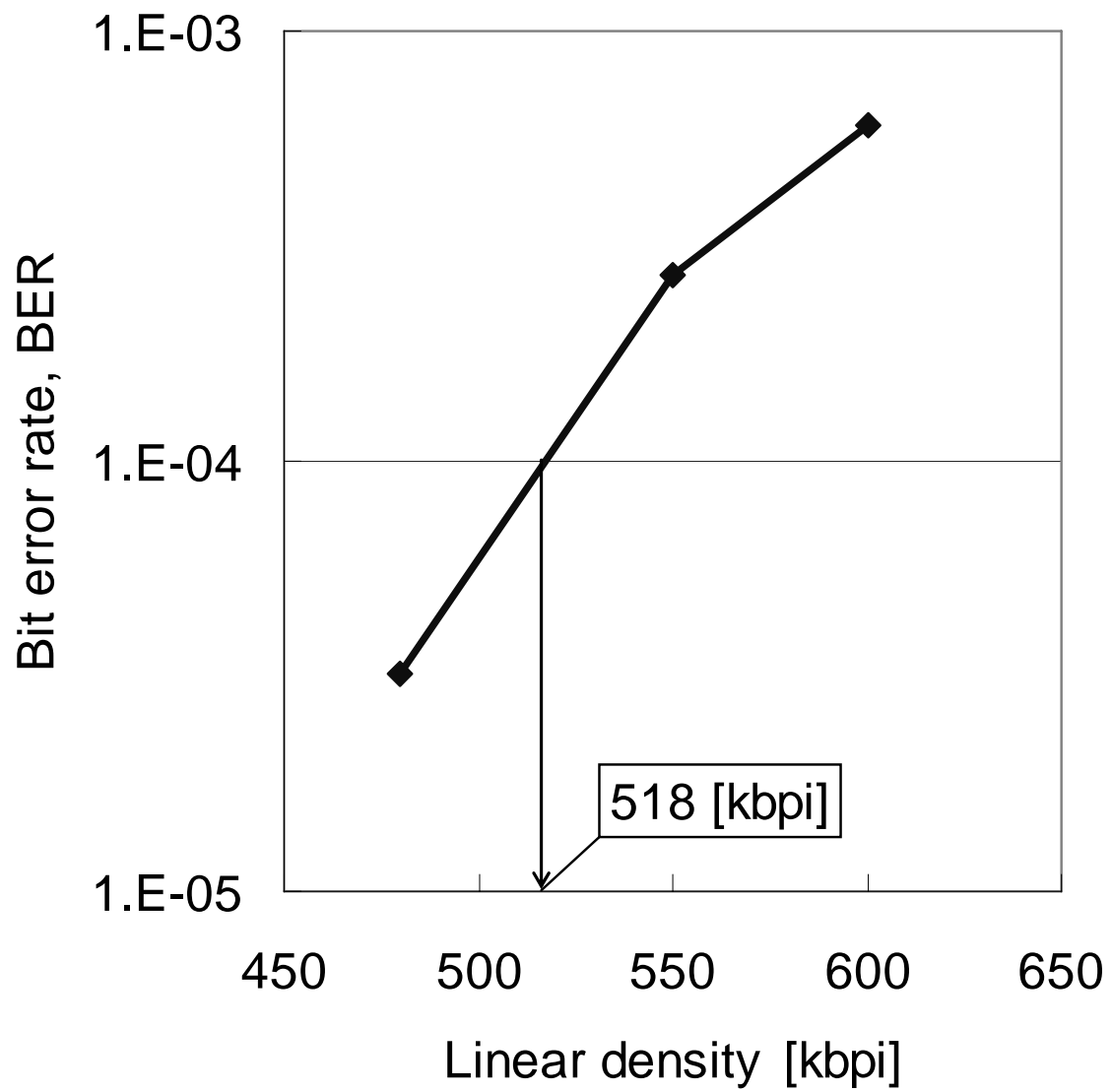


図 3.4.8-2 線記録密度とビットエラーレートの関係[C21]

§ 3.4.9 まとめ

本節では、磁性粒子としてバリウムフェライトを用いた塗布型媒体の高性能化について議論してきた。その中で、バリウムフェライト粒子は微粒子化により、理論的に推定されるように粒子体積の逆数に従って SNR が向上すること。また、微細化に伴う、リスクと推定された、熱揺らぎや、耐食性に関しては、 1500 nm^3 程度まで微細化しても、何ら問題が無いことを示した。

また、磁性粒子を配向して容易軸の向きを揃えることによって SNR がさらに向上することを実験/シミュレーション両面で示した。配向の方向は、長手・垂直どちらでも SNR 向上は期待できるが、バリウムフェライトの形状を考慮すると、垂直配向が好ましいと考えられる。

リニアテープシステムにおいて、現実に面記録密度を向上させる場合、単に電磁変換特性の改善だけでは、大きな向上は期待できない。リニアテープシステムで面記録密度を HDD に比べて著しく低く制限している要因は、トラッキング性能であり、これを改善するためには、摺動性能の向上が必須である。本節で示したように、媒体面の比較的長周期のウネリを低減させ、微小突起によってヘッドメディア間のスペーシングを一定に保つことによって、摺動特性は著しく改善する。

これらのことを実現し、微粒子バリウムフェライトを垂直配向させた媒体で、 29.5 Gbit/in^2 の実現を確認した。

第5節 結言

本章では情報ストレージとして、単位容積あたりの情報量を、もっとも大きくすることが可能な磁気テープシステム用媒体の中で、特にコスト優位性が高い塗布型磁気テープの高性能化に関する検討をした。まず、現在、主流で利用されているメタル媒体の薄層化に伴う電磁変換特性の向上について議論し、次に、磁性粒子としてバリウムフェライトを用いた媒体について詳細な検討を行った。

媒体の記録層の薄層化は、記録媒体としての特性向上に大きく貢献するものであり、今後も、塗布技術の向上により、薄層化は進んでいくものと考えられる。

バリウムフェライト粒子は、結晶磁気異方性が大きく、メタル磁性体とは異なり、形状磁気異方性に依存しないで情報を保持することが可能な媒体となりうる。その結果、磁性粒子の微粒子化が可能で、その体積を 1500 nm^3 程度まで微粒子化しても、十分な保磁力を維持することが可能である。また、バリウムフェライトの σ_s の低さは、再生信号レベルが低くなることにつながるため、従来は、利用上の制限となっていたが、GMRヘッドのような高感度な再生ヘッドが実用化され、むしろ、内部磁界が低い状態が実現できるため、遷移幅を小さくし、また、記録の安定性にも寄与していると考えられる。実際、熱安定性パラメータがメタルテープよりも低い媒体であっても、出力低下は、メタルテープよりも少ないことを確認した。さらに、バリウムフェライト媒体の化学的安定性は非常に高く、腐食性ガス雰囲気下においても、ほとんど変化しないことも確認した。

これらの検討結果を踏まえ、垂直配向したバリウムフェライト媒体で、リニアテープシステムを想定した走行系を前提として、面記録密度 29.5 Gbit/in^2 を実現を確認した。

第4章 総括

第1節 結果の概要

増え続ける情報を如何に低コストで、安全に保管するか。こうした社会の要請に応えることが本研究の目的である。まず、単位空間あたり保管可能な情報量を高めるには、三次元的に記録が可能な磁気テープが優れている。一方で、こうした磁気テープの価値を最大限享受するためには、大面積の媒体が必要である。実際、4インチ程度のカートリッジ1本の中の磁気テープの面積は、3.5インチハードディスクの凡そ、1000倍にもなる。こうした大面積の媒体を低コストで製造するためには、大気中で製造可能な塗布技術を用いて製造できることが望ましい。本研究は、こうした背景に基づき、塗布型磁気テープシステムで高容量を実現するための技術開発を進めた。媒体の高記録密度化のための要件として、まず、高保磁力の磁性粒子で作製された媒体が必要になる、一方、この高保磁力な磁性粒子の磁化を反転することが可能な高飽和磁束密度の軟磁性材料が必要になる。本研究では、これら両者について検討を行った。

以下、章ごとに研究成果をまとめる。

第2章 高飽和磁束密度耐熱性軟磁性材料

本章では、高飽和磁束密度で耐熱性も備えた軟磁性材料を開発するために、鉄の結晶磁気異方性が保磁力に及ぼす影響を如何に低減するかが研究の課題であった。

・配向膜

配向を制御することによる可能性について理論的検討を行った。 bcc-Fe の $\langle 111 \rangle$ 配向した膜であれば、優れた軟磁性を示すと予想されることを明らかにした。

・Fe-X-N(X=Zr, Hf, Ta, Nb)

Feを主体とした組成系で、ランダムに配向した微結晶であって、且つこれらの微結晶が交換結合で相互作用を及ぼしあう程度に近接することによって、結晶磁気異方性を持たない非晶質的特性と、結晶としての熱安定性を兼ね備えた薄膜の開発を試みた。その結果、Feに微量のZr, Hf, Ta, Nbなどの元素を添加したターゲットを用いて、 N_2 を含むスパッタガス中で非晶質を成膜し、熱処理によって微結晶を析出させることによって、15 kG以上の飽和磁束密度を持ち、耐熱性も高い軟磁性薄膜を開発

することに成功した。さらに、Fe-Zr-N 薄膜の結晶化過程、磁気特性、機械的特性、電気的特性についてその詳細を明らかにした

• Fe-Zr-B-M (M=Co, Ni, Cr, V)

ここでは、窒素の代わりに硼素を用いることを試みた。硼素は、窒素と異なり、ターゲット中に入れることが容易であり、製造方法に対する安定性が高まることを期待してこれを検討した。その結果、窒素系以上に飽和磁束密度が高く、 $\text{Fe}_{87.6}\text{Co}_{3.2}\text{Zr}_{5.8}\text{B}_{3.3}$ 薄膜で、 $B_s=18$ kG、透磁率 $\mu(1\text{MHz})>5000$ で 550 °Cの耐熱性を有する軟磁性薄膜を開発することができた。

第3章 高記録密度塗布型磁気媒体

本章では、塗布型媒体の高記録密度化について検討を行った。

• 薄層塗布型メタル媒体

カーリングモデルを用いた二次元有限要素法を薄層塗布型メタル媒体に適用し、記録再生に及ぼす各種要因について詳細に調査し、薄層塗布型メタル媒体の再生出力に及ぼす媒体の保磁力と最大磁束密度の影響を明確にした。また、媒体の保磁力を 2500 Oe 以上に高めた場合、記録ヘッドの飽和磁束密度は 15 kG 以上必要になることがわかった。さらに、配向分布の影響についても面内での分布、膜厚方向での分布に分けて調査した。その結果、配向分布は狭い(角型比が大きい)ほど、再生出力は向上すると考えられるが、膜厚方向には、むしろ分布を持たせたほうが再生出力を高くできることを示した。これは、膜厚方向に分布を持たせることによって、記録層表面に磁束が出やすくなったことが影響していると推定される。

• 塗布型バリウムフェライト媒体

バリウムフェライトを磁性粒子として用いた記録媒体について検討を行い、その高記録密度適性に関する可能性について明らかにした。その結果、平均体積 1600 nm³ の磁性体を垂直配向させ、うねりが少ない表面に微小突起を形成した摺動面とすることで、高記録密度と高摺動性の両立を図り、再生トラック幅 0.2 μm の GMR ヘッドを用いて、トラックマージン 0.246 μm(トラックピッチ 0.446 μm)、線記録密度 518 kbp_i での実用的総合性能を確認した。これは、面記録密度 29.5 Gb/in² を達成可能なことを意味している。この記録密度は容量が 1.5 TB の LTO-5(1.2 Gb/in²)の 24 倍以上であり、カートリッジあたり 35 TB 以上の容量に相当するものである。また、バリウムフェライトテープの熱的・化学的安定性についても評価し、長期間にわたるデータ保管媒体として十分な信頼性を確保できることを確認した。

第2節 今後の展望

2011年2月、リニアテープシステム用磁気カートリッジとして、初めて、バリウムフェライト磁性体を使った磁気媒体が、5TBの容量で発売された。1.5TBのLTO-5カートリッジが発売されてから、1年未満で、実に容量で3倍以上のカートリッジが発売されたことになる。これは、従来2~3年で2倍と言われていたトレンドを大きく加速するものである。本研究で実現した面記録密度29.5 Gbit/in²は、おおよそ35TBのカートリッジ容量に相当する。しかし、もし、今後も2~3年で2倍のトレンドで高容量化が進むと10年後には、100TB程度のカートリッジが必要になる。テープの薄手化も多少進むと考えられるが、面記録密度で70 Gbit/in²程度は必要になると推定される。これを実現するためには、ヘッド及び媒体の高性能化による電磁変換特性の向上、高精度で高速な位置制御技術の開発、低SNRでも信号再生可能な信号処理・エラー訂正技術、などの総合的な進展が必須である。記録媒体としては、真空蒸着やスパッタリング成膜を用いた高性能化の研究も行われているが、現実的なコストに対する社会の要請を鑑みると、塗布型で実現できることが好ましい。

本研究で議論したバリウムフェライトは、微粒子であるにも関わらず、十分な熱安定性を有しており、更なる微粒子化が可能である。また§3.4.3のシミュレーションで示したように、配向度の向上により、さらにSNRを向上することが期待できる。これらを実現するためには、磁性粒子の開発や、配向プロセスの開発と合わせて、個々の磁性体の凝集を回避し、確実に分散する技術の向上も重要となる。粒子を微細化していくと、粒子同士の結合を分離するのが困難になってくる。完全な分散を進めることは、粒子性ノイズの低減のみならず、配向度の向上にも有効な手段である。また、§3.4.4で示したように、粒子の異方性磁界分布の低減によってもSNRの向上が可能である。これらの、ことを実現することにより、塗布型バリウムフェライト媒体で、カートリッジ容量100TB程度までは実現可能と推定される。

参 考 文 献

第 1 章

- [A1] J. Gantz and D. Reinsel, "The Digital Universe Decade – Are You Ready?", (2010) available at <http://idcdocserv.com/925> (As of Feb. 11, 2011).
- [A2] JEITA 磁気記録媒体標準化専門委員会「データメディアの寿命評価」, (2009), http://home.jeita.or.jp/is/committee/tech-std/std/jumyou_v2.pdf.
- [A3] Eduardo Pinheiro, Wolf-Dietrich Weber and Luiz Andre Barroso, "Failure Trends in a Large Disk Drive Population", Proceedings of the 5th USENIX Conference on File and Storage Technologies, (2007).
- [A4] Y. Sasaki, N. Usuki, K. Matsuo, and M. Kishimoto, "Development of NanoCAP technology for high-density recording," IEEE Trans. Magn., vol. 41, no. 10, pp. 3241-3243, (2005).
- [A5] T. Inoue, K. Nakiri, H. Mitsuhashi, M. Fukumoto, T. Doi, Y. Sasaki, and M. Kishimoto, "Playback Performance of Ultrahigh-Capacity Tape Media With Nanosized Composite Advanced Particle (NanoCAP)," IEEE Trans. Magn., vol. 42, no. 3, pp. 465-467 (2006).
- [A6] T. Nagata, T. Harasawa, M. Oyanagi, N. Abe, and S. Saito, "A Recording Density Study of Advanced Barium-Ferrite Particulate Tape," IEEE Trans. Magn., vol. 42, no. 10, pp. 2312-2314, (2006).
- [A7] D. Berman, R. Biskeborn, N. Bui, E. Childers, R. D. Cideciyan, W. Dyer, E. Eleftheriou, D. Hellman, R. Hutchins, W. Imaino, G. Jaquette, J. Jelitto, P.-O. Jubert, C. Lo, G. McClelland, S. Narayan, S. Oelcer, T. Topuria, T. Harasawa, A. Hashimoto, T. Nagata, H. Ohtsu, and S. Saito., "6.7 Gb/in² Recording Areal Density on Barium Ferrite Tape," IEEE Trans. Magn., vol. 43, no. 8, pp. 3502-3508, (2007).
- [A8] M. L. Watson, R. A. Beard, S. M. Kientz, "Investigation of Thermal Demagnetization Effects in Data Recorded on Advanced Barium Ferrite Recording Media," IEEE Trans. Magn., vol. 44, no. 11, pp. 3568-3571, (2008).
- [A9] S. Ölçer, E. Eleftheriou, R. A. Hutchins, H. Noguchi, M. Asai, H. Takano,

- “Performance of Advanced Data-Detection Schemes on Barium-Ferrite Particulate Media,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 45, no. 10, pp. 3765-3768, (2009).
- [A10] A. Matsumoto, Y. Murata, A. Musha, S. Matsubaguchi, O. Shimizu, “High Recording Density Tape Using Fine Barium-Ferrite Particles With Improved Thermal Stability,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 46, no. 5, pp. 1208-1211, (2010).
- [A11] O. Shimizu, T. Harasawa, and M. Oyanagi, “Particle Orientation Effects of Barium Ferrite Particulate Media,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 46, no. 6, pp. 1607-1609, (2010).
- [A12] T. Harasawa, R. Suzuki, O. Shimizu, S. Ölçer, E. Eleftheriou, “Barium-Ferrite Particulate Media for High-Recording-Density Tape Storage Systems,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 46, no. 6, pp. 1894-1897, (2010).
- [A13] 原澤 建, 鈴木涼太, 武者敦史, 清水 治, 野口 仁, 「リニアテープシステム用バリウムフェライトテープの高密度化研究」映像情報メディア学会技術報告 34, No. 26 MMS2010-27, (2010).
- [A14] G. Cherubini, R. D. Cideciyan, L. Dellmann, E. Eleftheriou, W. Haeberle, J. Jelitto, V. Kartik, M. A. Lantz, S. Ölçer, A. Pantazi, H. E. Rothuizen, D. Berman, W. Imaino, P-O. Jubert, G. McClelland, P. V. Koeppel, K. Tsuruta, T. Harasawa, Y. Murata, A. Musha, H. Noguchi, H. Ohtsu, O. Shimizu, and R. Suzuki, “29.5-Gb/in² Recording Areal Density on Barium Ferrite Tape,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 47, no. 1, pp. 137-147, (2011).
- [A15] K. Motohashi, T. Sato, T. Samoto, N. Ikeda, T. Sato, H. Ono, S. Onodera, “Investigation of Higher Recording Density Using an Improved Co–CoO Metal Evaporated Tape With a GMR Reproducing Head,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 43, no. 6, pp. 2325-2327, (2007).
- [A16] P-O. Jubert, D. Berman, W. Imaino, T. Sato, N. Ikeda, D. Shiga, K. Motohashi, H. Ono, S. Onodera, “Study of Perpendicular AME Media in a Linear Tape Drive,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 45, no. 10, pp. 3601-3603, (2009).
- [A17] H. Fujiura, S. Nakagawa, “Fabrication of CoCrPt–SiO₂ films on flexible

- tape substrate using facing target sputtering system,” *J. Magn. Magn. Mat.*, 310. pp. 2659-2661, (2007).
- [A18] S. Matsunuma, T. Inoue, T. Doi, T. Matsuu, A. Hashimoto, H. Fujiura, K. Hirata, and S. Nakagawa, “Playback Performance of Facing Targets Sputtered Tape Media on Moving Tape Substrate with a High Speed,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 44, no. 11, pp. 3561-3563 (2008).
- [A19] S. Matsunuma, T. Inoue, T. Doi, T. Matsuu, A. Hashimoto, H. Fujiura, S. Nakagawa, “Playback performance and microstructure of sputtered tape media formed by facing targets sputtering,” *J. Magn. Magn. Mat.*, vol. 320, pp.2996-2999 (2008).
- [A20] T. Matsuu, A. Hashimoto, H. Fujiura, S. Matsunuma, T. Inoue, T. Doi, S. Nakagawa, “Ru-O/Ru hybrid type of underlayer for CoPtCr-SiO₂ perpendicular recording media on flexible tape,” *J. Magn. Magn. Mat.*, vol. 320, pp.3000-3003 (2008).
- [A21] D. Berman, V. H. Chembrolu, T. Topuria, S. Matsunuma, T. Inoue, T. Doi, T. Matsuu, A. Hashimoto, K. Hirata, S. Nakagawa, “Magnetic Recording Measurements of Sputtered Media on Tape at an Areal Density of 14 Gb/in²,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 45, no. 10, pp. 3584-3586 (2009).
- [A22] 松沼悟, 井上鉄太郎, 土井嗣裕, 渡辺利幸, 五味俊輔, 益子泰裕, 平田健一郎, 中川茂樹, 第34回日本磁気学会学術講演概要集, 5aA-10, p. 114 (2010).
- [A23] S. Matsunuma, T. Inoue, T. Watanabe, T. Doi, Y. Mashiko, S. Gomi, K. Hirata, S. Nakagawa, “Playback performance of perpendicular magnetic recording tape media for over-50-TB cartridge by facing targets sputtering method,” *J. Magn. Magn. Mat.*, in press (2011).
- [A24] Roger F. Hoyt et al., eds., “Magnetic Recording The First 100 years,” IEEE press (1999).
- [A25] S. Umeki, S. Saitoh, and Y. Imaoka, ” A New High Coercive Magnetic Particle for Recording Tape,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 10, pp. 655-656, (1974).
- [A26] 北本達治, 笹沢幸司, 横山克哉, 村松珊吾, 「コバルト添加酸化鉄の加圧減磁」, 信学技報, MR-74-34 (1975).
- [A27] 北本達治, 笹沢幸司, 「コバルト添加酸化鉄」, 日本応用磁気学会第1回研究

会資料, p.11 (1977).

- [A28] Y. Imaoka, S. Umeki, Y. Kubota and Y. Tokuoka, "Characteristics of Cobalt adsorbed Iron Oxide Tapes," IEEE Trans. Magn., vol. 14, no. 5, pp. 649-654 (1978).
- [A29] Y. Kubota, H. Morita, Y. Tokuoka, and Y. Imaoka, "A New Approach to the Synthesis of Cobalt Modified Iron Oxide," IEEE Trans. Magn., vol. 15, no. 6, pp. 1558-1560 (1979).
- [A30] M. Amemiya, M. Kishimoto, and F. Hayama, "Formation and Magnetic Properties of γ -Fe₂O₃ Particles Surface Modified with Crystallized Cobalt-Ferrite," IEEE Trans. Magn., vol. 16, no. 1, pp. 17-19 (1980).
- [A31] G. Bate, "Recent developments in magnetic recording materials," J. Appl. Phys., vol. 52, pp. no. 3 pp. 2447-2452 (1981).
- [A32] M. P. Sharrock, "Particulate Magnetic Recording Media: A Review," IEEE Trans. Magn., vol. 25, no. 6, pp. 4374-4389, (1989).
- [A33] 鈴木明, 笠原美幸, 「磁気記録用メタル磁性粉の開発について」, 粉体および粉末冶金, 第42巻, 第6号, pp. 695-701 (1995).
- [A34] S. Hisano, and K. Saito, "Research and development of metal powder for magnetic recording," J. Magn. Magn. Mat., vol. 190, pp. 371-381 (1998).
- [A35] M. P. Sharrock, "Recent Advances in Metal Particulate Recording Media: Toward the Ultimate Particle," IEEE Trans. Magn., vol. 36, no. 5, pp. 2420-2425, (2000).
- [A36] S. J. F. Chadwick, A. E. Virden, V. Haehnel, J. D. Dutson, K. Matsumoto, T. Yoshida, T. Sawano, T. Goto, K. Ikari, K. O'Grady, "Development of metal particle (MP) technology for flexible recording media," J. Phys. D: Appl. Phys., 41 134018 (2008).
- [A37] H. Inaba, K. Ejiri, N. Abe, K. Masaki, H. Araki, "The advantages of the thin magnetic layer of a metal particulate tape," IEEE Trans. Magn., vol. 29, no. 6, pp. 3607-3612, (1993).
- [A38] H. Inaba, K. Ejiri, K. Masaki, T. Kitahara, "Development of an advanced metal particulate tape," IEEE Trans. Magn., vol. 34, no. 4, pp. 1666-1668, (1998).

第2章

- [B1] R. M. Bozorth, "Ferromagnetism", p. 194, D. VAN NOSTRAND COMPANY, INC. (1951).
- [B2] M. Takahashi, M. Yoneda, M. Naoe, "Deposition of amorphous CoZrNb films using CMF magnetron sputtering technique", Jpn J. Appl. Phys., vol. 28, pp. 379-383 (1989).
- [B3] 近松聡信, 強磁性体の物理「下」 p. 140, 裳華房, 東京(1984).
- [B4] 清水 治, 中西寛次, 吉田 敏, 「配向性 Fe 系薄膜の軟磁気特性に関する考察」, 日本応用磁気学会誌, vol. 14, pp. 293-295, (1990).
- [B5] 近松聡信, 強磁性体の物理「下」 p. 8, 裳華房, 東京(1984).
- [B6] A. Hosono and Y. Shimada, "Crystal structure and magnetic softness of Fe-Si polycrystalline films," J. Appl. Phys. vol. 67, no. 11, pp.6981-6990, (1990).
- [B7] 細野彰彦, 島田 寛, 電子情報通信学会 春季全国大会講演論文集, C-174, 5-174 (1989).
- [B8] 近松聡信 他, 磁性体ハンドブック, p. 848, 朝倉書店, 東京 (1975).
- [B9] G. Herzer, "Grain size dependence of coercivity and permeability in nanocrystalline ferromagnets," IEEE Trans. Magn. vol. 26 no. 5 pp. 1397-1402 (1989).
- [B10] 斉藤喜彦, 仁田勇監修「X線結晶学 上」第5版, pp. 140-141, 丸善. (1975).
- [B11] 中西寛次, 清水 治, 吉田 敏, 「Fe-X-N (X=Zr, Hf, Nb, Ta)薄膜の磁気特性」, 日本応用磁気学会誌, vol. 15, pp.371-374 (1991).
- [B12] O. Shimizu, K. Nakanishi, and S. Yoshida, "Influence of excess N on FeZrN soft magnetic film," J. Appl. Phys. 70 (10), pp. 6244-6246, (1991).
- [B13] 清水 治, 中西寛次, 吉田 敏, 「FeZrBM (M=Co, Ni, Cr, V) スパッタ膜の軟磁気特性」, 日本応用磁気学会誌, vol. 16, pp.239-242 (1992).
- [B14] 長谷川直也, 斉藤正路, 小島章伸, 牧野彰宏, 見崎吉成, 渡辺徹, 「Fe-M-C (M=Ti, Zr, Hf, V, Nb, Ta)膜の結晶化挙動」, 日本応用磁気学会誌, vol. 14, pp. 319-322, (1990).
- [B15] 長谷川直也, 斉藤正路, 「高い熱安定性を有する微結晶 Fe-M-C (M=Ti, Zr,Hf)膜の軟磁気特性」, 電子情報通信学会技術報告, MR89-12 (1989).

- [B16] K. Suzuki, A. Makino, N. Kataoka, A. Inoue, T. Masumoto, " High saturation magnetization and soft magnetic properties of bcc Fe-Zr-B and Fe-Zr-B-M (M = transition metal) alloys with nanoscale grain size," *Matter. Trans., JIM*, vol. 32, pp. 93-102 (1991).
- [B17] 島津武仁, 高橋研, 上住洋之, 佐藤武信, 高橋実, 脇山徳雄, 日本応用磁気学会誌, 「Fe-Ni-Nb 系合金薄膜の軟磁気特性」, vol. 13, pp. 281- 284 (1989).
- [B18] M. Takahashi and S. Ishino, " Uniaxial Magnetic Anisotropy in Evaporated Films Caused by the Interaction with Substrate," *Jpn J. Appl. Phys.*, vol. 16, pp. 579-584, (1977).
- [B19] 清水 治, 中西寛次, 吉田 敏, 「軟磁性薄膜の磁歪測定の一方法」, 日本応用磁気学会誌, vol. 15, pp.723-724, (1991).
- [B20] 金原 粲, 藤原英夫, 応用物理学選書 3 薄膜 p. 129 裳華房, 東京 (1979).

第3章

- [C1] 阿部直人, 江尻清美, 荒木宏明, 「薄層 MP テープのデジタル記録特性」, 電子情報学会技術報告, MR92-83 (1992).
- [C2] H. Inaba, K. Ejiri, N. Abe, K. Masaki, H. Araki, “The advantages of the thin magnetic layer of a metal particulate tape,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 29, no. 6, pp. 3607-3612, (1993).
- [C3] H. Doshita, T. Takeda, and H. Inaba, “Physical characteristics of thin layer metal particulate media,” *Advances in Information Storage System 6*, pp. 437-444, (1995).
- [C4] 田河育也, 中村慶久, 「磁化モデルを組み込んだ有限要素法による単磁極ヘッド・二層媒体間磁氣的相互作用の解析」, 日本応用磁気学会誌, vol. 13, pp. 145-148, (1989).
- [C5] 清水 治, 中村慶久, 「薄層 MP 媒体の記録再生特性シミュレーション」, 日本応用磁気学会誌, vol. 19, pp.181-184, (1995).
- [C6] 田河育也, 清水幸也, 中村慶久, 「計算機シミュレーションによる斜め配向媒体の記録機構・記録特性の解析」電子情報通信学会技術報告, MR91-6 (1991).
- [C7] 吉成次郎, 田河育也, 中村慶久: 電子情報通信学会春季大会, C-456 (1993).
- [C8] T. Fujiwara, M. Isshiki, Y. Koike, and T. Oguchi, “Recording performances of Ba-ferrite coated perpendicular magnetic tapes,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 18, no. 6, pp. 1200-1202, (1982).
- [C9] O. Kubo, T. Ido, and H. Yokoyama, “Properties of Ba ferrite particles for perpendicular magnetic recording media,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. MAG-18, no. 6, pp. 1122-1124, (1982).
- [C10] 落合圭一, 青木延之, 菰田英明, 「バリウムフェライト系新酸化物テープの電磁変換特性」, 日本応用磁気学会誌, vol. 14, pp. 49-52, (1990).
- [C11] T. Nagata, T. Harasawa, M. Oyanagi, N. Abe, and S. Saito, “A Recording Density Study of Advanced Barium-Ferrite Particulate Tape,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 42, no. 10, pp. 2312-2314, (2006).
- [C12] A. Matsumoto, Y. Endo, and H. Noguchi, “The feasibility of +15Gb/in² high-density recording with barium-ferrite particulate media and a GMR head,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 42, no. 10, pp. 2315-2317, (2006).

- [C13] D. Berman, R. Biskeborn, N. Bui, E. Childers, R. D. Cideciyan, W. Dyer, E. Eleftheriou, D. Hellman, R. Hutchins, W. Imano, G. Jaquette, J. Jelitto, P.-O. Jubert, C. Lo, G. McClelland, S. Narayan, S. Oelcer, T. Topuria, T. Harasawa, A. Hashimoto, T. Nagata, H. Ohtsu, and S. Saito., “6.7 Gb/in² Recording Areal Density on Barium Ferrite Tape,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 43, no. 8, pp. 3502-3508, (2007).
- [C14] M. L. Watson, R. A. Beard, S. M. Kientz, “Investigation of Thermal Demagnetization Effects in Data Recorded on Advanced Barium Ferrite Recording Media,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 44, no. 11, pp. 3568-3571, (2008).
- [C15] S. Ölçer, E. Eleftheriou, R. A. Hutchins, H. Noguchi, M. Asai, H. Takano, “Performance of Advanced Data-Detection Schemes on Barium-Ferrite Particulate Media,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 45, no. 10, pp. 3765-3768, (2009).
- [C16] O. Shimizu, T. Harasawa, and M. Oyanagi, “Particle Orientation Effects of Barium Ferrite Particulate Media,” *IEEE Trans. Magn.* Vol.46 No. 6, pp.1607-1609 (2010).
- [C17] 清水 治, 原沢 建, 鈴木 涼太, 鈴木 宏幸, 山崎 信夫, 武者 敦史, 村田 悠人, 居樹 実, 西田 徹二, 野口 仁, 「Ba-ferrite 磁性体を用いたリニアテープシステム用塗布型媒体」, *J. Magn. Soc. Jpn.*, vol. 35, pp. 27-33 (2011).
- [C18] O. Shimizu, et al., “Long-Term Archival Stability of Barium-Ferrite Magnetic Tape”, *J. Magn. Soc. Jpn.*, vol. 36, pp. 1-4 (2012).
- [C19] A. Matsumoto, Y. Murata, A. Musha, S. Matsubaguchi, and O. Shimizu, “High Recording Density Tape Using Fine Barium-Ferrite Particles With Improved Thermal Stability,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 46, no. 5, pp. 1208-1211,(2010).
- [C20] T. Harasawa, R. Suzuki, O. Shimizu, S. Ölçer, and E. Eleftheriou, “Barium-Ferrite Particulate Media for High-Recording-Density Tape Storage Systems,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 46, no. 6, pp. 1894-1897, (2010).
- [C21] G. Cherubini, R. D. Cideciyan, L. Dellmann, E. Eleftheriou, W. Haeberle, J. Jelitto, V. Kartik, M. A. Lantz, S. Ölçer, A. Pantazi, H. E. Rothuizen, D.

- Berman, W. Imano, P-O. Jubert, G. McClelland, P. V. Koeppe, K. Tsuruta, T. Harasawa, Y. Murata, A. Musha, H. Noguchi, H. Ohtsu, O. Shimizu, and R. Suzuki, "29.5-Gb/in² Recording Areal Density on Barium Ferrite Tape," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 47, no. 1, pp. 137-147, (2011).
- [C22] D. M. Paige, S. R. Hoon, and B. K. Tanner, "High precision torque hysteresis measurements on fine particle system," *IEEE Trans. Magn.*, vol. MAG-20, no. 5, pp. 1852–1854, (Sep. 1984).
- [C23] M. P. Sharrock, "Measurement and interpretation of magnetic time effects in recording media," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 35, no. 6, pp. 4414–4422, (Nov. 1999).
- [C24] H. Pfeiffer, "Determination of anisotropy field distribution in particle assemblies taking into account thermal fluctuations," *Phys. Stat. Sol. (A)*, vol. 118, pp. 295–306, (1990).
- [C25] N. Shinohara et al., "Performance of GPRML-AR system in perpendicular magnetic recording channel with thermal decay," *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 320, pp. 3136–3139, (2008).
- [C26] J. D. Coker, E. Eleftheriou, R. L. Galbraith, and W. Hirt, "Noise-predictive maximum likelihood (NPML) detection," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 34, no. 1, pp. 110–117, (1998).
- [C27] A. Kavcic and J. M. F. Moura, "The Viterbi algorithm and Markov noise memory," *IEEE Trans. Inform. Theory*, vol. 46, no. 1, pp. 291–301, (2000).
- [C28] A. Kavcic and A. Patapoutian, "A signal-dependent autoregressive channel model," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 35, no. 5, pp. 2316–2318, (1999).
- [C29] Y. Okamoto et al., "Jitter-like noise cancellation using AR model of PR channel in perpendicular magnetic recording," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 38, no. 5, pp. 2349–2351, (2002).
- [C30] J. Moon and J. Park, "Pattern-dependent noise prediction in signal dependent noise," *IEEE J. Sel. Areas Commun.*, vol. 19, no. 4, pp. 730–743, (2001).
- [C31] A. Moser and D. Weller, "Thermal processes and stability of longitudinal magnetic recording media," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 35, no. 5, pp. 2808–2813, (1999).

- [C32] <http://www.micromagnetica.com>
- [C33] D. A. Lindholm, "Magnetic fields of finite track width heads," *IEEE Trans. Magn.* vol. 13, no. 5, pp. 1460-1462, (1977).
- [C34] G. Mian and T. D. Howell "Determining a signal to noise ratio for an arbitrary data sequence by a time domain analysis," *IEEE Trans. Magn.* vol. 29, no. 6, pp. 3999-4001, (1993).
- [C35] D. Z. Bai, A. F. Trabi, M. Benakli, M. L. Mallery, and J. G. Zhu "Micromagnetic modeling of longitudinal and perpendicular media with various Head/SUL combination," *IEEE Trans. Magn.* vol. 40, no. 4, pp. 2555-2557, (2004)
- [C36] K. Ishiyama, A. Toyoda, and K. I. Arai, "Measurement of Anisotropy Dispersion in Soft Magnetic Films," *IEEE Trans. Magn.* Vol 31, no 6, pp3841-3843, (1995).
- [C37] P.J. Flanders and S. Shtrikman, "Experimental determination of the anisotropy distribution in ferromagnetic powders", *J. Appl. Phys.*, vol. 33, no. , pp. 216-219, (1962).
- [C38] W. H. Abbott, "The development and performance characteristics of mixed flowing gas test environment," *IEEE Trans. Components, Hybrids, Manuf. Technol.*, vol. 11, no. 1 pp. 22-35 (1988).
- [C39] P. J. Sides, G. Spratt, and J. P. Kampf, "An investigation of the archivability of metal particle tape," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 30, no. 6, pp. 4059-4064. (Nov. 1994).
- [C40] T. Iwano and K. Kobayashi, *IEEE Trans. Magn.*, 41, 3010 (2005).
- [C41] D. C. Abbott, R. A. Frechette, G. Haynes, and D. W. Romm., "Shelf-Life Evaluation of Nickel/Palladium Lead Finish for Integrated Circuits" Texas Instruments Application Notes, (1998) available at <http://focus.ti.com/lit/an/szza002/szza002.pdf> (As of Feb. 7, 2011).
- [C42] Y. Murata and K. Inoue, "Evaluation Method for the Magnetic Spacing of Ba-Ferrite Particulate Media," *J. Magn. Soc. Jpn.*, vol. 34, pp. 182-184 (2010).
- [C43] Z. Z. Bandic and R. H. Victoria, "Advances in magnetic data storage technologies," *Proc. IEEE*, vol. 96, no. 11, pp. 1749-1753, (2008).

- [C44] <https://www.bluestoragemedia.com/External/BigBlueBytes/LTO5%20ProductGuideMTM.pdf> (As of Feb. 7 2011).
- [C45] International Magnetic Tape Storage Roadmap Information Storage Industry Consortium (INSIC), (2008).

本研究に関する発表論文リスト

[1] 1st name の論文

- [1-1] 清水 治, 中西寛次, 吉田 敏, 「配向性 Fe 系薄膜の軟磁気特性に関する考察」, 日本応用磁気学会誌 vol. 14, pp.293-295, (1990).
- [1-2] O. Shimizu, K. Nakanishi, and S. Yoshida, “Influence of excess N on FeZrN soft magnetic film,” J. Appl. Phys. 70 (10), pp. 6244-6246, (1991).
- [1-3] 清水 治, 中西寛次, 吉田 敏, 「軟磁性薄膜の磁歪測定の一方法」, 日本応用磁気学会誌 vol. 15, pp.723-724, (1991).
- [1-4] 清水 治, 中西寛次, 吉田 敏, 「FeZrBM (M=Co, Ni, Cr, V) スパッタ膜の軟磁気特性」, 日本応用磁気学会誌 vol. 16, pp.239-242 (1992).
- [1-5] 清水 治, 中村慶久, 「薄層 MP 媒体の記録再生特性シミュレーション」, 日本応用磁気学会誌 vol. 19, pp.181-184, (1995).
- [1-6] O. Shimizu, T. Harasawa, and M. Oyanagi, “Particle Orientation Effects of Barium Ferrite Particulate Media,” IEEE Trans. Magn. Vol.46 No. 6, pp.1607-1609, (2010).
- [1-7] 清水 治, 原沢 建, 鈴木 涼太, 鈴木 宏幸, 山崎 信夫, 武者 敦史, 村田 悠人, 居樹 実, 西田 徹二, 野口 仁, 「Ba-ferrite 磁性体を用いたリニアテープシステム用塗布型媒体」, J. Magn. Soc. Jpn., vol. 35, pp. 27-33 (2011).
- [1-8] O. Shimizu, Y. Murata, Y. Kurihashi, T. Harasawa, M. Asai, M. Sueki, H. Noguchi, “Long-Term Archival Stability of Barium-Ferrite Magnetic Tape”, J. Magn. Soc. Jpn., vol. 36, pp. 1-4 (2012).

[2] 2nd name 以降の論文

- [2-1] 中西寛次, 清水 治, 吉田 敏, 「Fe-X-N (X=Zr, Hf, Nb, Ta)薄膜の磁気特性」, 日本応用磁気学会誌 vol. 15, pp.371-374 (1991).
- [2-2] K. Nakanishi, O. Shimizu, and S. Yoshida, “Effect of added elements M (M=V, Cr, Mn, Co, Ni) on soft magnetic properties of Fe-Zr-N films,” IEEE

- Trans. Magn., vol. 27, no. 6, pp. 5322-5324, (1991).
- [2-3] 中西寛次, 清水 治, 吉田 敏, 「Fe-Zr-N 膜の透磁率の周波数特性」, 日本応用磁気学会誌 vol. 16, pp.590-593 (1992).
- [2-4] A. Matsumoto, Y. Murata, A. Musha, S. Matsubaguchi, and O. Shimizu, “High Recording Density Tape Using Fine Barium-Ferrite Particles With Improved Thermal Stability,” IEEE Trans. Magn., vol. 46, no. 5, pp. 1208-1211, (2010).
- [2-5] T. Harasawa, R. Suzuki, O. Shimizu, S. Ölçer, and E. Eleftheriou, “Barium-Ferrite Particulate Media for High-Recording-Density Tape Storage Systems,” IEEE Trans. Magn., vol. 46, no. 6, pp. 1894-1897, (2010).
- [2-6] J. Lee, M. Fuger, J. Fidler, D. Suess, T. Schrefl, O. Shimizu, “Modeling of the write and read back performances of hexagonal Ba-ferrite particulate media for high density tape recording,” J. Magn. Magn. Mater., vol. 322, pp. 3869–3875, (2010).
- [2-7] G. Cherubini, R. D. Cideciyan, L. Dellmann, E. Eleftheriou, W. Haeberle, J. Jelitto, V. Kartik, M. A. Lantz, S. Ölçer, A. Pantazi, H. E. Rothuizen, D. Berman, W. Imaino, P-O. Jubert, G. McClelland, P. V. Koeppel, K. Tsuruta, T. Harasawa, Y. Murata, A. Musha, H. Noguchi, H. Ohtsu, O. Shimizu, and R. Suzuki, “29.5-Gb/in² Recording Areal Density on Barium Ferrite Tape,” IEEE Trans. Magn., vol. 47, no. 1, pp. 137-147,(2011).
- [2-8] P-O. Jubert, B. Biskeborn, D. Qiu, A. Matsumoto, H. Noguchi, and O. Shimizu, “Noise and Recording Properties of Barium-Ferrite Particulate Media Studied by Micromagnetic Modeling,” IEEE Trans. Magn., vol. 47, no. 2, pp. 386-394,(2011).

[3] その他の技術発表

- [3-1] 清水 治, 中西寛次, 吉田 敏, 「配向性 Fe 系薄膜の軟磁気特性に関する考察」, 第 13 回 日本応用磁気学会学術講演概要集 24aG-7, p. 415 (1989).

- [3-2] 中西寛次, 清水 治, 吉田 敏, 「Fe-X-N (X=Zr, Hf, Nb, Ta)薄膜の磁気特性」, 第14回日本応用磁気学会学術講演概要集, 10pC-9, p. 298 (1990).
- [3-3] 清水 治, 中西寛次, 吉田 敏, 「Fe-Zr-N 薄膜の磁気特性に及ぼす熱処理の効果」, 第14回日本応用磁気学会学術講演概要集 10pC-10, p. 299 (1990).
- [3-4] 中西寛次, 清水 治, 吉田 敏, 「Fe-Zr-N 系合金膜の熱処理と磁気特性」, 日本金属学会 1990年秋季(第107回)大会講演概要集 p. 420 (1990).
- [3-5] 清水 治, 中西寛次, 吉田 敏, 「FeZrBM(M=Co, Ni, Cr, V)スパッター膜の軟磁気特性」, 第15回日本応用磁気学会学術講演概要集 31pE-3, p. 387 (1991).
- [3-6] 中西寛次, 清水 治, 吉田 敏, 「Fe-Zr-N 膜の透磁率の周波数依存性」, 第15回日本応用磁気学会学術講演概要集 1pE-5, p. 510 (1991).
- [3-7] O. Shimizu, K. Nakanishi, and S. Yoshida, "Influence of excess N on FeZrN soft magnetic film," The 5th Joint MMM-Intermag Conf. (1991).
- [3-8] K. Nakanishi, O. Shimizu, and S. Yoshida, "Effect of added elements M (M=V, Cr, Mn, Co, Ni) on soft magnetic properties of Fe-Zr-N films," The 5th Joint MMM-Intermag Conf. (1991).
- [3-9] 中西寛次, 清水 治, 吉田 敏, 「Fe-X-N(X=Zr,Hf,Nb,Ta)薄膜の磁気特性」, 日本金属学会 窒化強磁性材料のマグネティックス シンポジウム予稿 p.20 (1991).
- [3-10] 中西寛次, 清水 治, 吉田 敏, 「Fe-Zr-N 系薄膜の軟磁気特性に及ぼす添加元素の効果」, 日本応用磁気学会 第78回研究会資料 78-15 p.87 (1993).
- [3-11] 清水 治, 中村慶久, 「薄層 MP 媒体の記録再生特性シミュレーション」, 第18回日本応用磁気学会学術講演概要集 14pG-8, p.358 (1994).
- [3-12] 北原淑行, 中尾 徹, 清水 治 「未飽和デジタル記録における塗布型媒体の検討」, 日本応用磁気学会 第83回研究会資料 (1998).
- [3-13] T. Harasawa, R. Suzuki, O. Shimizu, S. Oelcer, E. Eleftheriou "Barium Ferrite Particulate Media for High-Recording-Density Tape Storage Systems," The 11th MMM-Intermag Conf. AD-14 p. 59.
- [3-14] O. Shimizu, T. Harasawa, M. Oyanagi, "Particle Orientation Effects of Barium-Ferrite Particulate Media," The 11th MMM-Intermag Conf. AD-15 p. 60.

- [3-15] G. Cherubini, R. D. Cideciyan, L. Dellmann, E. Eleftheriou, W. Haeberle, J. Jelitto, V. Kartik, M. A. Lantz, S. Ölçer, A. Pantazi, H. E. Rothuizen, D. Berman, W. Imano, P-O. Jubert, G. McClelland, P. V. Koeppel, K. Tsuruta, T. Harasawa, Y. Murata, A. Musha, H. Noguchi, H. Ohtsu, O. Shimizu, and R. Suzuki, "29.5-Gb/in² Recording Areal Density on Barium Ferrite Tape," Digest of The 21st Magnetic Recording Conference TMRC 2010, C3, pp. 29-30, (2010).
- [3-16] 清水 治, 村田 悠人, 原沢 建, 浅井 雅彦, 居樹 実, 野口 仁, 「磁気テープシステムの今後の媒体性能向上について」, 日本写真学会 2011年度 年次大会講演要旨集, FO5, p. 88 (2011).
- [3-17] 原澤 建, 鈴木涼太, 武者敦史, 清水 治, 野口 仁, 「リニア-テープシステム用バリウムフェライトテープの高密度化研究」映像情報メディア学会技術報告 Vol. 34, No. 25, MMS2010-27 p. 67 (2010).
- [3-18] 武者敦史, 清水 治, 「塗布型Ba-ferriteテープシステムに適した信号処理方式の検討」2010年映像情報メディア学会年次大会 17-4 (2010).
- [3-19] 清水 治, 村田 悠人, 栗橋悠一, 原沢 建, 浅井 雅彦, 居樹 実, 野口 仁, 「バリウムフェライト磁気テープの長期保存性」第35回 日本磁気学会学術講演会概要集 (2011).

謝辞

本研究を遂行するにあたり，非常に多くの方々の御指導，御協力を頂きました．ここに厚く御礼申し上げます．

まず，最初に感謝致しますのは，茨城大学 杉田龍二教授と小峰啓史准教授です．本論文をまとめるにあたり，細部に至るまで親切な御指導と御鞭撻を賜りました．心から感謝の意を表します．茨城大学 小林正典教授，大貫仁教授，清水淳准教授には貴重なご指導を頂きました．深謝いたします．

カーリングモデルを用いたシミュレーションでは東北大学電気通信研究所 中村慶久教授(現岩手県立大学学長)，田河育也先生(現日立グローバルストレージテクノロジーズ)のご指導を頂きました．マイクロマグネティックスシミュレーションでは，Vienna University of Technology, Prof. Josef Fidler 及び IBM Almaden Research Laboratories, Dr. Pierre-Olivier Jubert と示唆に富むディスカッションをして頂きました．記録密度を検証する為の信号処理技術に関して，愛媛大学 大沢寿教授，岡本好弘教授，仲村泰明先生の御指導を頂きました．IBM Zurich Research Laboratories の Dr. Evangelos Eleftheriou, Dr. Jens Jelitto, Dr. Mark A. Lantz, Dr. Sedat Ölçer の協力なくして，29.5 GBPSI の実証は不可能でありました．厚く御礼申し上げます．

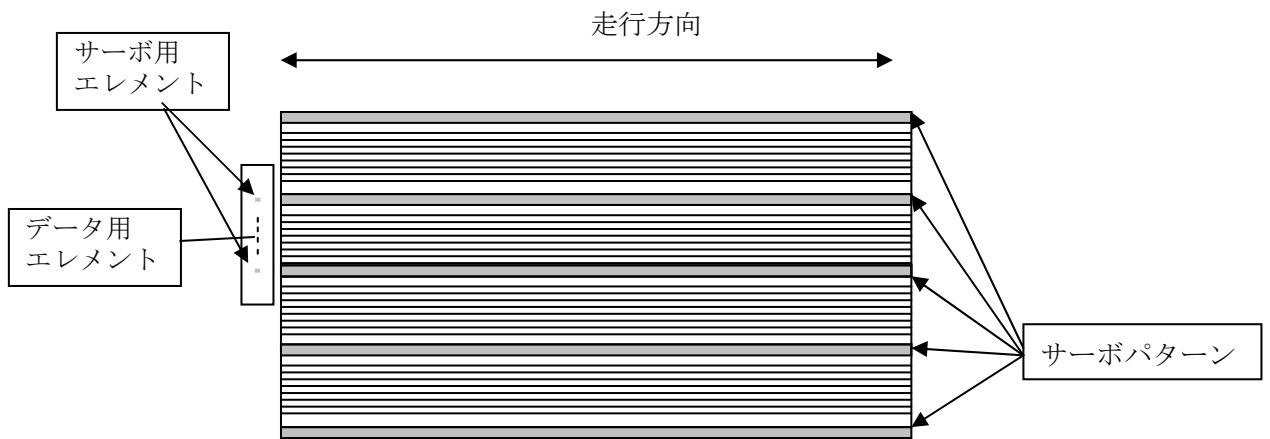
富士フイルム社内のかたがたにも多くの御指導，御協力を頂きました．軟磁性材料の研究では，中西主任研究員の御指導によるところ大きく，また研究の機会を提供頂いた吉田元研究部長にも感謝いたします．バリウムフェライト媒体の研究全般について，野口研究部長，橋本研究部長，浅井主任研究員，居樹主任研究員，西田課長の御指導，御協力を頂きました．ありがとうございます．実験，評価，解析，議論にご協力頂いた原沢主任研究員，大津主任研究員，松葉口，鈴木，松本，小柳，村田，武者，松村，栗橋諸氏に感謝します．

長尾元研究部長には，本論文執筆を薦めて頂き，また，つたない初稿原稿を丁寧に確認頂きました．論文提出を御裁可頂くに当たり，斉藤研究所長，柴田事業部長に御協力頂きました．ここに感謝の意を表します．

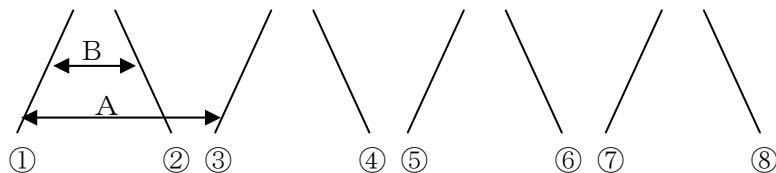
付録

付録A リニアテープシステムのトラック位置検出方法

リニアテープシステムでは、媒体に事前にサーボ信号と呼ばれる所定のパターンを記録して、このパターンをデータ用ヘッドとは別のサーボ信号用再生ヘッドで読み取ることでトラック位置検出を行っている。下記にイメージ図を示す。



リニアテープは通常複数のバンド分割されており、上図は4バンドの例である。サーボパターンは各バンドの両サイドに存在し、バンド数+1箇所記録されている。複数チャンネルがインライン上に並んだヘッドで記録再生が行われるが、これらのデータ用エレメントの両サイドにサーボ信号再生用のエレメントを備えた磁気ヘッドが利用される。サーボパターンは周期的な「ハ」の字のパターンで記録され、その信号位置からテープのトラック幅方向の位置を算出している。パターン詳細を下記に記す。



信号①と信号③は平行に記録されているために、ヘッドのトラック幅方向には依存しない周期で再生される。その周期を **A** とする。一方、信号①と信号②は、ヘッドのトラック幅方向の位置に依存してその信号の間隔が変化する。その時間間隔を **B** とする。ヘッドのトラック幅方向での位置は **A** と **B** の比から計算して求めることができる。ECMA319 では、Ultrium-1 のサーボ信号として、ハの字の角度が $\pm 6^\circ$ であり、 $A=100 \text{ um}$ 、中心位置で $B=50 \text{ um}$ となるように規定されている。即ち、中心位置からの変位 δ は、

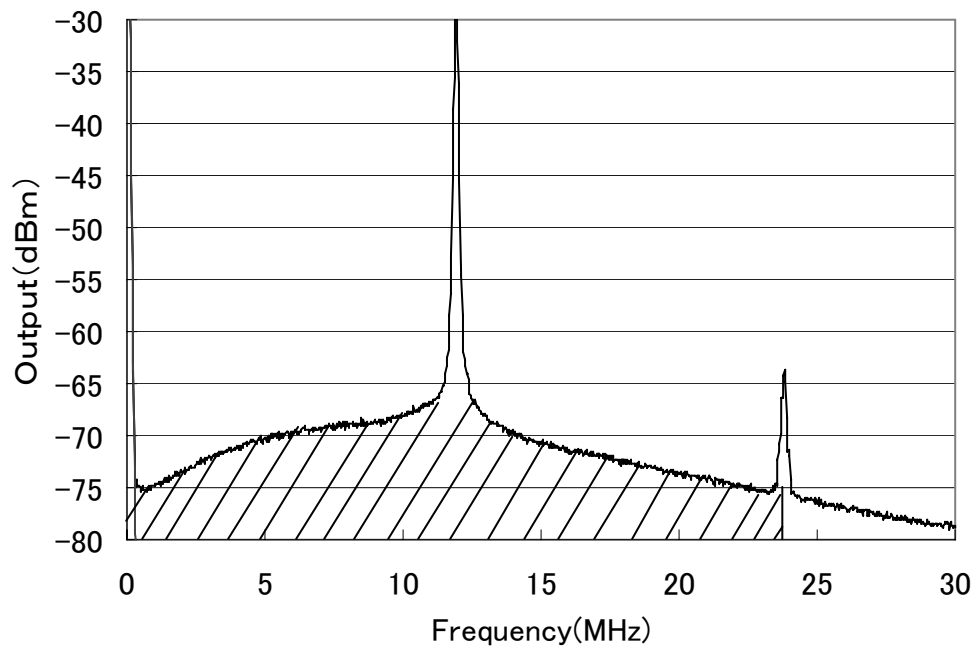
$$\delta = \frac{50 - 100(B/A)}{2 \tan 6}$$

で求めることができる。ここでは、説明を簡略化するため、①、②、③それぞれが、1本の信号として説明したが、実際のサーボパターンは、これらを複数の信号で構成し、テープ上の長さ方向の位置情報も検出可能にしている。

付録 B 各種 SNR の定義

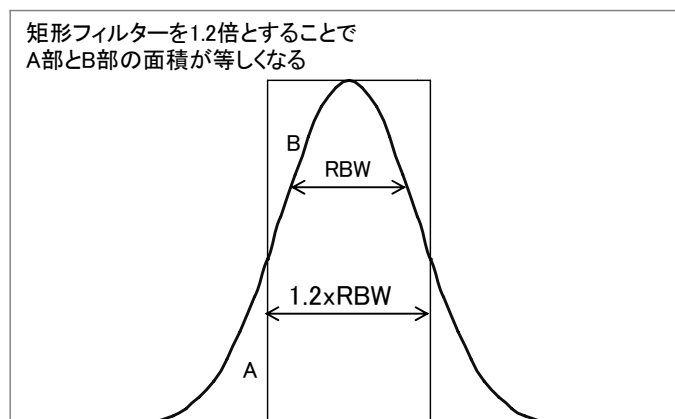
(1) BB-SNR (広帯域 SNR)

単一波長の Signal と、その波長を記録したときの、その 2 倍の周波数までの帯域のノイズの積分値との比. 通常 2T 信号(ビット周期の 2 倍の周期の信号)を記録再生すると、スペクトラムアナライザーで下図のような再生信号スペクトラムが観察される.



この図の斜線部がノイズであり、ピークが信号となる. ノイズの測定値は、スペクトラムアナライザーの「Resolution Band Width(RBW) Hz」に依存した値であり、その積分は「単位周波数あたりの電力 W/Hz」に換算した後行う必要がある.

また、RBW は、矩形フィルタではなく、ガウシアン型であるため、そのズレを補償するために、設定値の 1.2 倍した値とする(下図参照).



また、スペクトルアナライザが表示するノイズ電力は、実効値に対して 2.5dB 低い値(ログアンプで 1.45 dB, エンベロープ検波器 1.05 dB)*1)となるため、この補正を行う(全てのデータをデジタル化したのち、真の RMS を計算している場合は、この補正は不要).

$$N_i = M_i [dBm] - 10 \log((1.2RBW) + 2.5 [dBm / Hz])$$

$$N_{total} = \sum_i 10^{(N_i/10)} [mW]$$

$$BB-SNR = Signal [dBm] - 10 \log(N_{total}) [dB]$$

となる.

*1) <http://cp.literature.agilent.com/litweb/pdf/00-1977.pdf>

(2) AC-SNR(自己相関 SNR)

擬似ランダム系列の信号を、媒体上の異なった複数の位置に記録し、その信号間の相関から SNR を定義する. 異なった位置での信号の再現性に対応するもので、2 箇所(2 箇所)の信号が完全に一致すればノイズは無いと判断される.

2 箇所(2 箇所)の再生信号系列に対して、位相同期を行い、ビット周期信号の信号系列を生成する. これらを $S1_i$, $S2_i$ とすると、相関係数 γ は、

$$\gamma = \frac{\sum_i (S1_i - \overline{S1})(S2_i - \overline{S2})}{\sqrt{\sum_i (S1_i - \overline{S1})^2} \sqrt{\sum_i (S2_i - \overline{S2})^2}}$$

で定義され、この γ を用いて、自己相関 SNR*2)は、

$$AC-SNR = 10 \log\left(\frac{\gamma}{1-\gamma}\right) [dB]$$

となる.

*2) G. Mian et al., IEEE Trans. Magn, vol. 29, pp. 3999-4001

(3) Detector-SNR (検出点における SNR)

AC-SNR は、S = 「再現性のある信号」、N = 「再現性の無い信号」という考え方で、実際の記録再生信号を用いて、時間軸で評価できるというメリットを持っているが、現実の信号検出を考えた場合、各周波数の信号電力や雑音電力がエラーレートに対して等価な影響を与えるわけではない。そこで、さらに「実技に対応した評価指標」として、等価後の信号を時間軸で評価することが考えられる。

擬似ランダム系列の信号を記録し、その再生信号をイコライズしてビタビ検出するとき、理想信号を **Signal**、理想信号と実際の信号との差をノイズと定義し、これらのエネルギー比で SNR を定義する。例えば、EPR4 に等価した信号は、検出点で、-2, -1, 0, 1, 2 のどれかの値が「正しい値=Signal」であり、「正しい値からの差=Noise」が誤差である。既知の擬似ランダム系列を記録しているため、真の値も既知であり、i 番目の測定値 M_i と i 番目の「正しい値」 S_i を用いて、検出点における SNR は

$$\text{Detector-SNR} = 10 \log \left(\frac{\sum_i S_i^2}{\sum_i (M_i - S_i)^2} \right) [dB]$$

で定義される。

この評価指標は、イコライズターゲットによって値が変化することに注意する必要があるが、何らかのイコライズ方式を前提として上でのメディア性能評価指標としては、BB-SNR や AC-SNR よりも実技(エラーレート)との対応関係が優れている。